



# Etude et développement de nano-antennes fibrées pour la microscopie en champ proche optique et la nano-photonique

Mathieu Mivelle

## ► To cite this version:

Mathieu Mivelle. Etude et développement de nano-antennes fibrées pour la microscopie en champ proche optique et la nano-photonique. Autre [cond-mat.other]. Université de Franche-Comté, 2011. Français. NNT : 2011BESA2013 . tel-01062557

**HAL Id: tel-01062557**

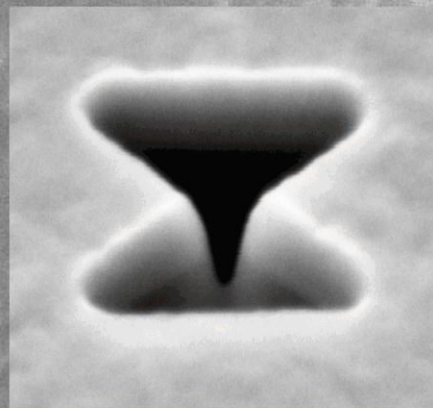
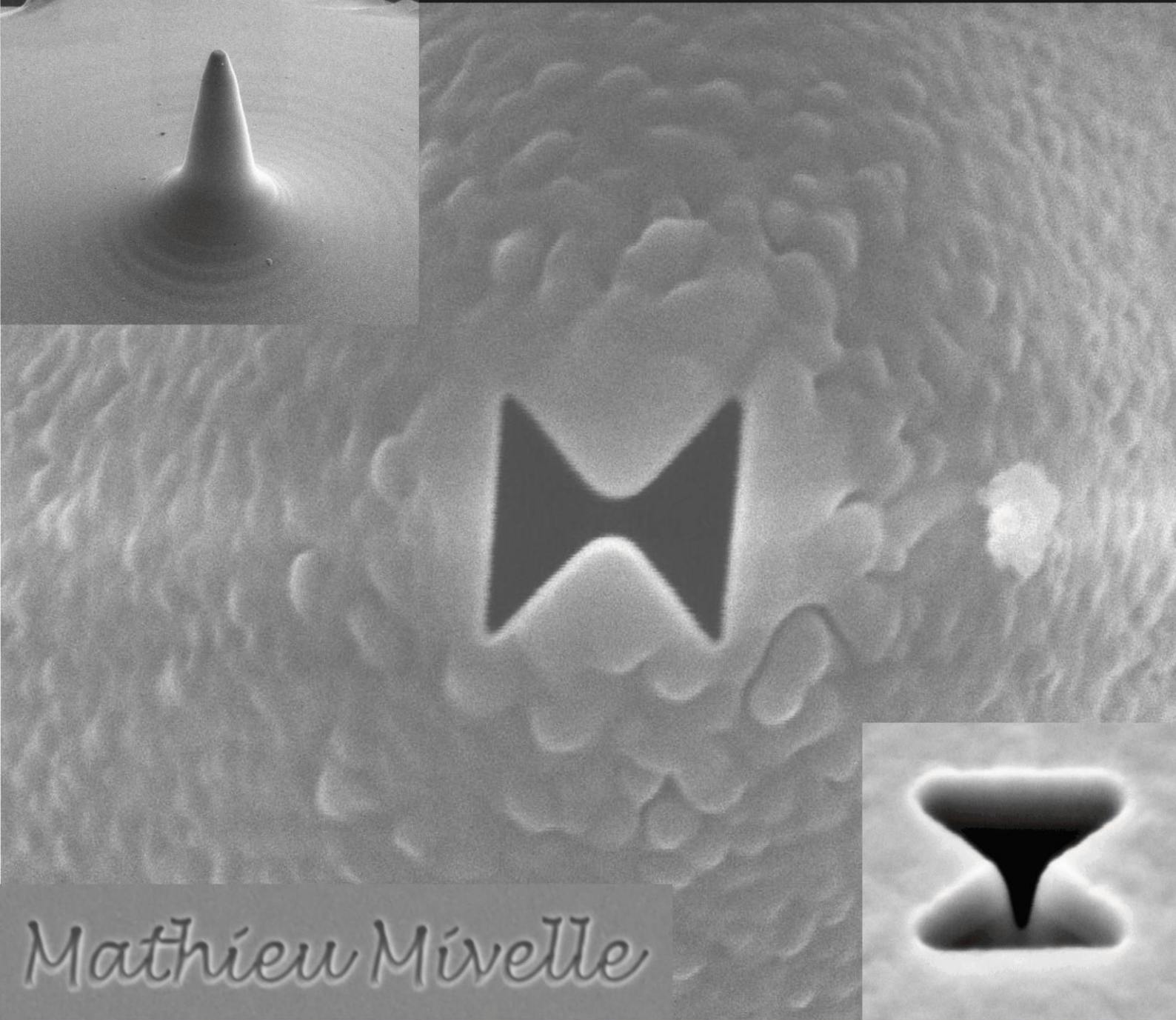
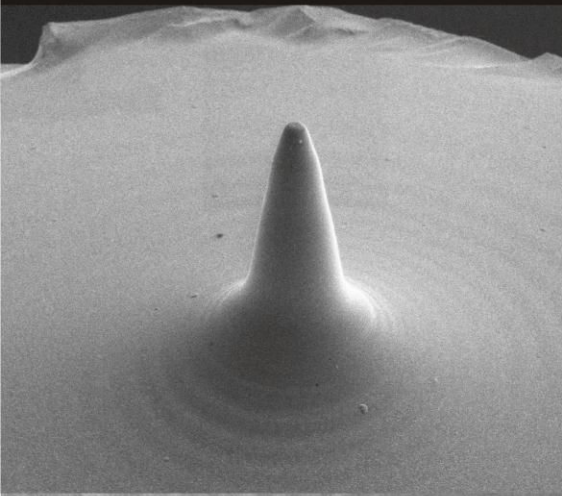
**<https://theses.hal.science/tel-01062557>**

Submitted on 10 Sep 2014

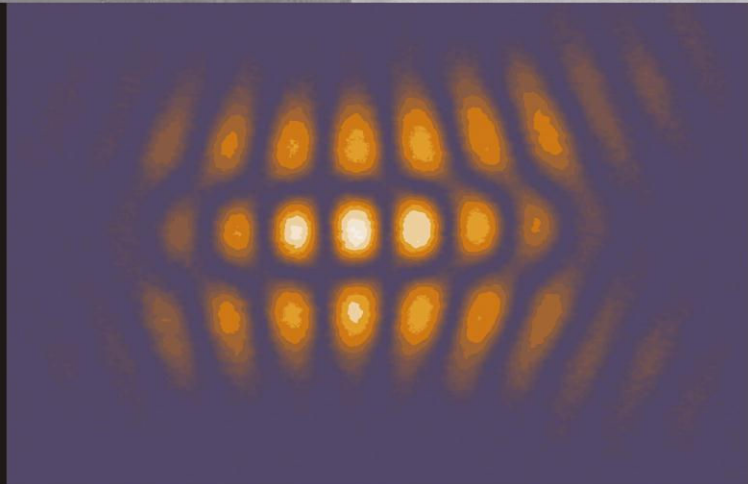
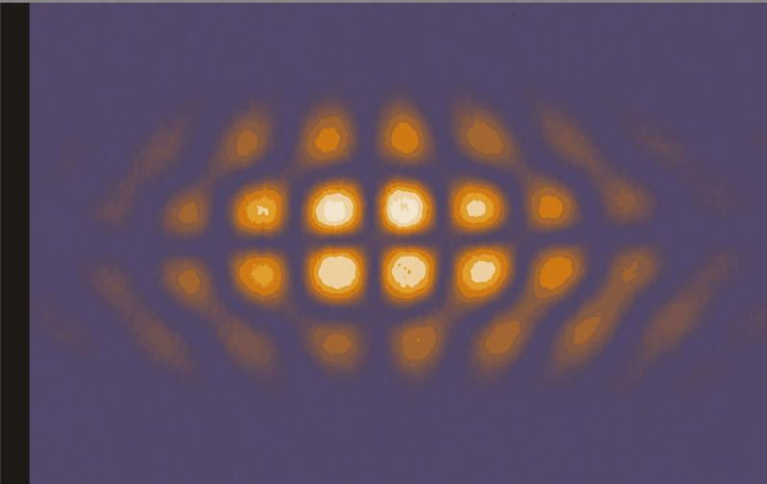
**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Etude et développement de nano-antennes fibrées pour la microscopie en champ proche optique et la nano-photonique



Mathieu Mivelle



# Thèse de Doctorat

Spécialité nano-optique

présentée par

**Mathieu MIVELLE**

Etude et développement de  
nano-antennes fibrées pour la  
microscopie en champ proche optique et  
la nano-photonique

**Thèse dirigée par Mr F. Baida et Mr T. Grosjean**

soutenue le 08/12/2011

Président : Hervé MAILLOTTE, Directeur de Recherche  
Rapporteurs : Renaud BACHELOT, Professeur  
Gérard COLAS DES FRANCS, Chargé de Recherche  
Examineurs : Ulrich FISCHER, Senior Scientist  
Fadi BAIDA, Professeur  
Thierry GROSJEAN, Chargé de Recherche

## Remerciements

Je tiens dans un premier temps à remercier mes deux co-directeurs de thèse Monsieur Thierry Grosjean Chargé de recherches CNRS et Monsieur Fadi Baida, Professeur à l'université de Franche Comté, pour m'avoir confié ce travail de recherches, pour leur aide et leurs précieux conseils au cours de ces trois années, ainsi que pour leur sympathie, leur disponibilité, leurs idées et conseils et aussi et surtout pour leur amitié. Merci.

Je remercie Monsieur Renaud Bachelot Professeur à l'Université de Technologie de Troyes et Monsieur Gérard Collas Des Francs chargé de recherches à l'Université de Bourgogne, d'avoir accepté de rapporter mon travail. Je remercie Monsieur Ulrich Fischer senior scientist à l'université de Munster, d'avoir accepté de participer à ce jury de thèse. Et je remercie Monsieur Hervé Maillote, Directeur de Recherches CNRS et directeur du Département d'optique P.M. Duffieux, président de ce jury.

J'aimerais adresser un remerciement particulier à l'équipe nano-optique à l'intérieur du département P. M. Duffieux, dans laquelle cette thèse a été effectuée. Merci en particulier à Maria et Daniel pour leurs conseils et soutiens tout au long de ces trois années, à Nadège pour les soirées coinche et barbecue, à mon ami Abdou et bien entendu à tous les doctorants de l'équipe.

De même, un grand merci au département d'optique dans lequel j'ai eu un grand plaisir à travailler, Merci pour les coups de mains de la part de Kien, Rémo, Pierre-Ambroise, Jean-Marc, Johann, Fred et Ludo. Merci à tous pour votre bonne humeur, pour les soirées à l'aqua et les parties de Shadow Hunter.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans une pensée pour Benjamin, mon colocataire, ami et collègue, ainsi que pour Christian, mon binôme et ami de toda la vida. Merci de m'avoir aidé et encouragé, et pour m'avoir changé les idées quand j'en avais besoin et merci pour les discussions et réflexions que nous avons pu avoir au cours de ces dernières années.

Mes dernières pensées iront vers ma soeur (merci pour l'orthographe), mon frère, et surtout mes parents, qui m'auront toujours encouragé et permis de poursuivre mes études jusqu'à aujourd'hui, aussi bien en restant près d'eux qu'à plusieurs milliers de kilomètres de distance. Merci, aussi et surtout, de m'avoir donné cette ouverture d'esprit qui est la votre et que je garderai toujours.

---



# Table des matières

Table des matières	0
Table des figures	2
<b>I Nano-ouverture papillon comme nano-collecteur pour la microscopie champ proche optique</b>	<b>17</b>
<b>1 Etat de l'art des nano-antennes optiques</b>	<b>19</b>
1.1 Historique et concept général . . . . .	19
1.2 Nano-antennes magnétiques . . . . .	21
1.2.1 Nano-antenne annulaire . . . . .	21
1.3 Nano-antennes électriques . . . . .	23
1.3.1 La nano-antenne dipolaire . . . . .	23
<b>2 Étude théorique d'une BNA intégrée sur fibre optique pour la microscopie en champ proche optique</b>	<b>33</b>
2.1 Cahier des charges . . . . .	33
2.2 Etude théorique . . . . .	34
2.2.1 Géométrie de nano-ouverture papillon résonante à $\lambda=1.55 \mu\text{m}$ . . .	38
2.2.2 Etude théorique des propriétés de collection d'une pointe SNOM fibrée présentant une BNA à son extrémité. . . . .	38
2.2.3 Etude de l'effet de l'indice d'un échantillon sur la résonance de la BNA placée au contact de cet échantillon. . . . .	46
2.2.4 Réponse spectrale en fonction de l'indice à l'intérieur de la cavité .	47
2.3 Réponse spectrale de la BNA en fonction de l'angle de ses triangles métalliques . . . . .	49
2.3.1 Réponse spectrale en fonction des défauts de la BNA . . . . .	50
2.4 Conclusions . . . . .	52
<b>3 Étude expérimentale d'une nano-ouverture à géométrie papillon en bout de pointe pour la microscopie champ proche optique</b>	<b>53</b>
3.1 Fabrication . . . . .	53
3.1.1 Fabrication de la pointe métallisée . . . . .	53
3.2 Usinage de la BNA . . . . .	56
3.3 Caractérisation . . . . .	58
3.3.1 Caractérisation en mode émission . . . . .	58
3.3.2 Caractérisation en mode collection . . . . .	60

3.4	Application : sonde locale pour la microscopie en champ proche : nano-analyseur de champ électrique optique . . . . .	60
3.4.1	Principe de fonctionnement d'un microscope optique en champ proche en mode collection par la pointe . . . . .	62
3.4.2	Réseaux diélectriques . . . . .	65
3.4.3	Cristal photonique à mode de Bloch . . . . .	67
3.4.4	Cristal photonique à mode de Cavit�� . . . . .	75
3.4.5	Echantillon Plasmonique . . . . .	87
<b>II</b>	<b>BNA comme interface entre un nano-��metteur et un mode de fibre optique</b>	<b>97</b>
3.5	Introduction . . . . .	99
<b>4</b>	<b>Etat de l'art des couplages entre un nano-��metteur et son milieu environnant</b>	<b>101</b>
4.1	Le facteur de Purcell . . . . .	101
4.2	Influence d'une interface plane sur un NE optique . . . . .	103
4.3	Influence d'une cavit�� sur un NE optique . . . . .	104
4.4	Influence d'une cristal photonique sur un NE optique . . . . .	105
4.5	Influence d'une nano-structure m��tallique sur un NE optique . . . . .	107
4.6	Influence d'une structure plasmonique sur un NE optique . . . . .	107
4.7	Influence d'une nano-particule sur un NE optique . . . . .	109
4.8	Couplage entre l'��mission d'un NE et un mode de fibre optique . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Etude th��orique d'une BNA comme coupleur champ proche entre un NE et un mode de fibre optique</b>	<b>119</b>
5.1	Cahier des charges . . . . .	119
5.2	Etude th��orique . . . . .	120
5.2.1	Etude quantique . . . . .	120
5.2.2	Etude classique . . . . .	126
5.3	Partie Simulation . . . . .	129
5.3.1	Calcul de la puissance ��mise par un dip��le ��lectrique . . . . .	129
5.3.2	Simulation test . . . . .	133
5.4	Simulations effectu��es . . . . .	134
5.4.1	Pointe polym��re et BNA . . . . .	134
5.5	Conclusion . . . . .	147
<b>6</b>	<b>Optimisation du couplage entre une BQ et un mode de fibre optique</b>	<b>149</b>
6.1	Etude du couplage d'un NE avec 3 pointes de la microscopie en champ proche	149
6.1.1	Etude th��orique . . . . .	149
6.1.2	Etude exp��rimentale . . . . .	156
6.2	Etude du couplage entre nano-��metteur et mode de fibre optique . .	169
6.2.1	Pointes polym��res seules . . . . .	170
6.2.2	Pointes polym��res coupl��es �� un miroir . . . . .	174
6.2.3	Antenne double r��sonance . . . . .	177
	<b>Bibliographie</b>	<b>191</b>

# Table des figures

1	Image FIB (Focused Ions Beam) d'une nano-ouverture à géométrie papillon en bout de pointe pour la microscopie en champ proche optique. . . . .	16
1.1	Exemple d'antennes électriques : a) antenne dipolaire, b) antennes monopolaires, c) antenne Yagi-Uda (et son inventeur) et d) antenne cornet. . .	21
1.2	Antenne boucle sensible au champ magnétique. . . . .	21
1.3	Image MEB (microscope électronique à balayage) de a) l'antenne annulaire en or en bout de sonde locale pour la microscopie en champ proche optique b) agrandissement de l'apex, d'après [1, 2]. . . . .	22
1.4	Shéma de a) la nano-ouverture à géométrie papillon, b) et c) l'antenne diabololo. . . . .	23
1.5	1) A et B, images MEB de la nano-antenne dipolaire, 1) C et D, puissance émise par le dipôle en champ lointain en fonction de la polarisation incidente. 2) B, C, D, intensité électrique théorique champ proche à la longueur d'onde de 830 nm pour différentes géométries d'antenne [3]. . . . .	24
1.6	a) et b) Images MEB d'une nano-antenne monopolaire en bout de pointe en champ proche optique, c) image SNOM et section du profil d'intensité d'une molécule unique détectée par la nano-antenne monopolaire [4]. . . .	25
1.7	a) Image MEB d'une nano-antenne Yagi-Uda, b) Diagramme de radiation de l'antenne Yagi-Uda [5]. . . . .	26
1.8	Schéma de l'antenne bowtie utilisé en micro-ondes par Grober. [6]. . . . .	27
1.9	Image MEB d'une nano-antenne papillon [7]. . . . .	27
1.10	a) et b) Réponses spectrales pour différentes géométries de nano-antennes papillons et dipolaire, c), d), e), f) Intensité lumineuse champ proche au dessus d'une nano-antenne papillon en fonction de ses dimensions à la longueur d'onde de 820 nm. [6]. . . . .	28
1.11	a) schéma d'une ouverture papillon, b) schéma d'une antenne papillon et c) image MEB d'une ouverture papillon (en bas à droite) [8]. . . . .	29
1.12	a), b), c) Longueur d'onde de résonance du mode fondamentale de la BNA en fonction de a) la dimension du gap, b) du logarithme du gap, c) de la largeur extérieure de l'ouverture [9, 10]. . . . .	29
1.13	1) a et b Image MEB de la nano-antenne papillon en bout de pointe AFM, 2) a, b, d, e, nombre de photons collectés par ms lors d'un scan d'une boîte quantique par la pointe et 2) c, f, temps de vie de l'état excité du nano-emetteur lors du scan de celui-ci par la nano-antenne. . . . .	30
1.14	a) Image MEB de la BNA en bout de pointe AFM, b) système d'illumination de la pointe champ proche pour créer le confinement à l'intérieur de l'ouverture, c) image AFM des gravures lithographiques obtenues grâce à ce système. . . . .	30

2.1	Image par microscope électronique à balayage (MEB) de la pointe polymère métallisée en bout de fibre optique monomode (SMF-28e). . . . .	34
2.2	Images MEB du bout de deux pointes en champ proche métallisées avec une couche d'aluminium d'épaisseur supérieure à 100 nm. . . . .	35
2.3	Différences finies de l'équation aux dérivées partielles (2.1). . . . .	37
2.4	Cellule de Yee, représentant la discrétisation de l'espace dans le modèle numérique et la répartition du champ électromagnétique dans cette cellule. . . . .	37
2.5	Schéma de la BNA dans une couche plane d'aluminium. . . . .	39
2.6	a) Pulse temporel excitant la BNA, b) Spectre optique correspondant à l'impulsion. . . . .	39
2.7	Spectre normalisé de l'intensité électrique en champ proche au centre du gap d'une BNA de dimensions $D=315$ nm et $G=45$ nm, gravée dans une couche plane d'aluminium d'épaisseur 100 nm. . . . .	40
2.8	Image du montage du super-calculateur BlueGene. . . . .	40
2.9	Schéma de la pointe à ouverture papillon modélisée sur le super-calculateur BlueGene, excitée par un dipôle centré sur le gap de la BNA, à 10 nm de celle-ci. . . . .	41
2.10	Réponse spectrale du signal collecté par la pointe BNA pour une excitation par un dipôle électrique orienté parallèlement aux ailes du papillon. A noter que la valeur en ordonné est normalisée par la puissance totale émise par le dipôle dans le vide. . . . .	42
2.11	Réponses spectrales en fin de pointe BNA pour a) une excitation par des dipôles électriques orientés selon les 3 axes principaux, b) des dipôles magnétiques également orientés selon ces axes X, Y, Z. A noter que la valeur en ordonnée est normalisée par la puissance totale émise par les dipôles considérés dans le vide. . . . .	43
2.12	Schéma de la pointe à ouverture papillon excitée par un faisceau gaussien. . . . .	44
2.13	Schéma de la simulation de la pointe balayant selon les axes (Ox) et (Oy) un dipôle déposé sur un substrat de verre et orienté selon (Ox). . . . .	46
2.14	Réponse impulsionnelle de la pointe BNA selon les axes propres (Ox) et (Oy). . . . .	46
2.15	Courbe d'approche de la sonde BNA sur un milieu semi-infini d'indice $n=1.5$ : longueur d'onde de résonance de la BNA en mode collection, en fonction de la distance substrat/pointe. . . . .	48
2.16	Schéma des simulations pour l'étude de la réponse spectrale de la pointe BNA en fonction de l'indice dans lequel elle se trouve. . . . .	48
2.17	Longueur d'onde de résonance de la pointe BNA en fonction du milieu dans lequel se trouve la pointe. . . . .	49
2.18	Schéma du modèle de la BNA pour l'étude de sa réponse spectrale en fonction de l'angle $\theta$ . a) coupe transverse et b) coupe longitudinale de l'ouverture. . . . .	50
2.19	Réponse spectrale de la BNA en fonction de l'angle $\theta$ . . . . .	50
2.20	Images MEB d'exemples de défauts pouvant exister lors de la fabrication de nano-structures. . . . .	51
2.21	Réponses spectrales de la BNA déposée sur un substrat d'indice 1.45, en fonction de certains défauts pouvant apparaître lors d'une fabrication. . . . .	51

3.1	a) Schéma de la phase d'insolation de la solution photosensible placée en bout de fibre optique clivée, b) Image MEB du résultat : pointe micro-métrique en polymère intégrée sur fibre optique et présentant un rayon de courbure d'apex de $1\ \mu\text{m}$ et une longueur de $30\ \mu\text{m}$ . . . . .	54
3.2	Image MEB d'une pointe utilisée dans le cadre du projet ANR NANOEC, son rayon de courbure était de $500\ \text{nm}$ et sa longueur de $30\ \mu\text{m}$ . . . . .	55
3.3	Image MEB a) d'une pointe dont l'ouverture a été gravée trop profondément (vue de coté de la pointe coupée au FIB dans le sens de la hauteur) et b) d'une pointe dont l'ouverture n'a pas été assez gravée (vue de face). . . . .	57
3.4	Image MEB d'un BNA sur pointe SNOM fibrée avec les paramètres d'usinage correctement ajustés. . . . .	57
3.5	Schéma de l'expérience menée en mode émission. . . . .	59
3.6	Images en champ lointain de la BNA sur pointe à travers un objectif de forte ouverture numérique (0.9) couplé à une caméra infrarouge. a) Le mode de fibre incident à la BNA est polarisé a) parallèlement et b) perpendiculairement aux ailes métalliques de la BNA . . . . .	59
3.7	Schéma de l'expérience menée en mode collection et en champ lointain. . . . .	61
3.8	Diagramme de polarisation obtenu lors de la rotation de la polarisation incidente sur la pointe à ouverture papillon en champ lointain et en mode de collection. . . . .	61
3.9	Photographies de la tête SNOM en condition de fonctionnement. . . . .	63
3.10	Schéma du montage utilisé pour caractériser nos différents échantillons. . . . .	64
3.11	Une ligne de balayage en champ lointain du réseau de pas $1.9\ \mu\text{m}$ en fonction de l'orientation de la BNA par rapport au champ électrique. . . . .	66
3.12	Schéma de l'acquisition SNOM du réseau par une sonde à ouverture papillon. . . . .	67
3.13	(a) image topographique du réseau, (b) image SNOM restituée par la BNA et (c) profil de la topographie et de l'image optique suivant une ligne perpendiculaire aux traits du réseau. L'image optique est comparée à la simulation de l'intensité de la composante du champ électrique diffractée qui est parallèle à la direction de polarisation de la BNA (à une altitude de $10\ \text{nm}$ ). . . . .	68
3.14	a) Diagramme de bande du cristal photonique 2D considéré dans cette étude. b) zone de Brillouin du cristal photonique à nid d'abeille, c) Image MEB du cristal photonique à nid d'abeille, d) e) et f) répartitions d'intensité électrique théoriques à l'intérieur d'un cristal photonique pour les modes monopolaire, hexapolaire et dipolaire, respectivement [11]. . . . .	69
3.15	Images topographiques de a) du cristal photonique à mode de Bloch lent monopolaire, b) un cristal photonique à mode de cavité. . . . .	69
3.16	a) Intensité électrique à $10\ \text{nm}$ de la surface d'un cristal photonique à mode de Bloch, b) Champ électrique à l'intérieur de l'un des motifs du cristal photonique [11]. . . . .	71
3.17	Images expérimentales du signal optique du cristal photonique à mode de Bloch obtenues avec la pointe BNA en fonction de son orientation [11]. . . . .	72
3.18	a) et b) Image théorique des cartographies de champ électrique à $10\ \text{nm}$ de la surface du cristal photonique à mode de Bloch. c) et d) Images expérimentales du signal optique obtenues avec la pointe BNA en fonction de son orientation [11]. . . . .	72



3.19	Signaux optiques champ proche obtenus par une pointe métallisée à ouverture circulaire [11]. . . . .	74
3.20	Image en champ lointain du mode du cristal photonique (collecté à travers le microscope inversé par l'objectif d'ouverture numérique de 0.75) [11]. . .	74
3.21	Diagramme de bande d'un micro-laser à cristal photonique (2D) à mode de cavité pour un paramètre de maille de 440 nm et des trous de 130 nm de diamètre fabriqués dans une couche de silicium [11]. . . . .	77
3.22	Distributions d'intensité électrique à la surface d'un cristal photonique à mode de cavité (CL7) pour les 4 premiers modes de la cavité (paramètre de maille de 420 nm, trous de 200 nm de diamètre gravés dans une couche de 250 nm d'INP). a) $\lambda = 1444$ nm, $Q = 1615$ , b) $\lambda = 1483$ nm, $Q = 1000$ , c) $\lambda = 1517$ nm, $Q = 1550$ , d) mode fondamental : $\lambda = 1530$ nm, $Q = 5800$ . . .	78
3.23	Cartographies théoriques du cristal photonique à modes de cavité de a) l'intensité électrique selon (OX), b) l'intensité électrique selon (OY). . . . .	78
3.24	a) Images topographiques d'un cristal photonique à mode de cavité, b) image optique au centre de la cavité du cristal photonique pour un pompage résonnant. . . . .	80
3.25	image optique au centre de la cavité du cristal photonique a) sans contrôleur de polarisation et polariseur et b) avec un contrôleur de polarisation et polariseur. . . . .	82
3.26	Spectre champ lointain de la cavité en photoluminescence. . . . .	82
3.27	Spectre en champ lointain de la cavité en mode laser. . . . .	83
3.28	Distribution d'intensité théorique pour a) la composante $E_y$ et b) la composante $E_x$ du champ électrique du mode fondamental de la nano-cavité, c) et d) images optiques en champ proche expérimentales de la nano-cavité en mode laser, en fonction de l'orientation de la BNA (voir inserts). . . . .	85
3.29	a) profil de l'image de b) (cf. figure 3.28 d)) entre deux maxima locaux. Le minimum correspond à un maxima de l'intensité du champ électrique filtrée par la BNA. b) Image optique de la cavité par la pointe BNA, c) profil de l'image optique b) selon le grand axe de la nano-cavité. . . . .	85
3.30	Distribution théorique d'intensité électrique en champ proche du mode fondamental du cristal photonique à CL7. . . . .	86
3.31	a) Image MEB et b) image topographique d'une couche mince d'or semi-continue au seuil de percolation. . . . .	88
3.32	Images au microscope optique classique de la couche d'or semi continue au seuil de percolation avec les repères gravés a) au laser fs, b) par FIB. . . . .	89
3.33	Schéma représentant les différentes informations que l'antenne peut détecter sur ces échantillons GEMaC, la flèche bleue représente la polarisation incidente (à la longueur d'onde de 1550 nm), la flèche rouge représente la polarisation que l'ouverture est capable de détecter et le papillon représente la direction de l'ouverture. . . . .	90
3.34	Images optique et topographique de la zone de la structure plasmonique analysée par la pointe BNA, la flèche bleue représente la polarisation incidente (à la longueur d'onde de 1550 nm), la flèche rouge représente la direction d'analyse vectorielle de la BNA et le papillon représente la direction de l'ouverture. . . . .	92
3.35	Comparaison entre a) la topographie d'une partie de l'échantillon GEMaC et b) le signal optique correspondant. . . . .	93

3.36	Profils a) optique et b) topographique d'une même ligne de l'image optique figure 3.35. . . . .	94
3.37	a) Image optique d'une partie de l'échantillon GEMaC pour une polarisation perpendiculaire à la nano-ouverture et b) coupe transverse de cette image. . . . .	95
4.1	Temps de vie et rendement quantique d'un dipôle parallèle (haut) et perpendiculaire (bas) à une surface d'argent, en fonction de la distance dipôle-surface. $\hat{b}$ représente le facteur de Purcell des dipôles, $q_a$ leurs rendements quantiques, $\hat{d}=2\pi n_1 d/\lambda$ et la distance en unités réduites à la surface, avec $d$ la distance dipôle-surface et $\lambda$ la longueur d'onde. $n_2$ et $k_2$ sont les parties réelle et imaginaire de l'indice optique de l'argent et $n_1$ est l'indice optique dans lequel sont placés les dipôles [12]. . . . .	104
4.2	Emission spontanée d'un atome dans une cavité en fonction du rapport entre la fréquence d'émission de l'atome $\nu_0$ et la fréquence de résonance de la cavité $\nu$ . La courbe foncée correspond à une polarisation TE et la courbe claire à une polarisation TM [13]. . . . .	105
4.3	Image MEB du cristal photonique [14]. . . . .	106
4.4	Temps de vie (partie droite) des états excités des BQs placées à l'intérieur du cristal photonique [14]. . . . .	106
4.5	Schéma de la nano-cavité métallique sphérique, la flèche représente le dipôle, le métal étant de l'argent et le milieu intérieur possède un indice optique de $n = 1,5$ [15]. . . . .	108
4.6	Rapport de l'énergie rayonnée en champ lointain par le dipôle en présence de la cavité ( $N$ ) sur celle sans la cavité ( $N_0$ ), en fonction du rayon ( $R$ ) et de l'épaisseur ( $d$ ) de la sphère métallique [15]. . . . .	108
4.7	(a) Schéma de la cavité proposée par Kuttge et al, (b) image MEB de cette cavité [16]. . . . .	109
4.8	(a) Spectre calculé de résonance de la cavité pour une excitation par cathodoluminescence (bleu), lumière polarisée TE (parallèlement à l'axe des cylindres) avec une couche d'accroche de chrome (rouge) et sans chrome (grise). (b) et (c) l'intensité électrique pour une excitation par un dipôle dans la cavité et par une plane polarisée TE respectivement [16]. . . . .	110
4.9	Taux de décroissance total $\Gamma$ , radiatif $\Gamma^R$ , non radiatif $\Gamma^{NR}$ pour un dipôle perpendiculaire à une nano-particule d'argent à la longueur d'onde de 612 nm (hors résonance) (a) et 354 nm (à la résonance) (b) [17]. . . . .	111
4.10	(Gauche) Schéma de la nano-particule d'or en bout de pointe champ proche au dessus d'un substrat contenant des molécules uniques, (droite) nombre de coups par seconde et augmentation du taux de fluorescence collectée en champ lointain en fonction de la distance particule-molécule [18]. . . . .	112
4.11	Rendement quantique $q$ et facteur de Purcell $F_p$ , pour une nano-antenne dipolaire en or, en fonction de la longueur d'onde et des dimensions de celle-ci [19]. . . . .	112
4.12	(a) réponse spectrale pour une excitation TM de la structure constituée de deux triangles de 20 nm de base placés à 5 nm d'un cylindre de 20 nm de diamètre, le tout d'une épaisseur de 20 nm. (b) et (c) respectivement l'intensité électrique champ proche en base log10 à la longueur d'onde de 390 nm et 334 nm [20]. . . . .	114

4.13	Pour la courbe rouge : (a) augmentation du taux radiatif, (b) non-radiatif et (c) le rendement quantique d'un émetteur placé au centre d'un des espaces triangle-cylindre, à la longueur d'onde de résonance (390 nm), en fonction de l'angle du dipôle par rapport à l'axe de l'entrefer [20]. . . . .	114
4.14	Images MEB de la nano-antenne papillon en bout de pointe AFM [21]. . .	115
4.15	Temps de vie de l'état excité de la BQ, en fonction de la position de la nano-antenne papillon, pour une polarisation parallèle (a) et perpendiculaire (b) à la nano-antenne [21]. . . . .	115
4.16	Schéma de la micro-cavité en bout de fibre optique pour le couplage de BQ au mode de fibre optique. La distance entre l'échantillon et le miroir est contrôlée par un tube piézoélectrique, de manière à optimiser le rôle de la cavité. Pour plus d'efficacité, la cavité est refroidie à 7K [22]. . . . .	116
4.17	(a) Schéma du coupleur entre la BQ et la fibre optique, (b) image MEB de sa réalisation, (c) image optique de la fibre posée sur le coupleur [23]. . . .	117
5.1	Représentation schématique des taux de décroissance à l'intérieur d'un système à deux niveaux d'énergie. . . . .	121
5.2	Schéma explicatif du calcul des intensités électriques $I_e$ et $I_0$ . . . . .	125
5.3	Schéma de la puissance calculée à travers six plans entourant le dipôle dans un milieu homogène et non-absorbant. . . . .	130
5.4	nano-bille d'or placée à quelques nanomètres d'un dipôle électrique. . . .	130
5.5	Augmentation du taux de décroissance radiatif d'un dipôle parallèle à l'interface entre du silicium et de l'air, en fonction de la distance dipôle-interface. $z$ étant la distance dipôle interface et $\lambda$ la longueur d'onde [24]. .	133
5.6	Augmentation du taux de décroissance radiatif d'un dipôle parallèle à l'interface entre du silicium et de l'air, calculé par intégration du flux du vecteur de Poynting et par la méthode numérique décrite à $\lambda=830$ nm. . . .	134
5.7	Schéma de la pointe BNA balayant en Z un dipôle placé à 5 nm dans un substrat d'indice 1.45. . . . .	136
5.8	Facteur de Purcell et augmentation de la puissance émise par le dipôle en fonction de la distance substrat-pointe. . . . .	137
5.9	Distribution de l'intensité électrique (racine cinquième) au voisinage et à l'intérieur de la pointe BNA, excitée par un dipôle électrique placé à 5 nm en face de son extrémité se trouvant en contact du substrat diélectrique d'indice $n=1.45$ . . . . .	138
5.10	Schéma de la pointe polymère balayant en Z un dipôle placé à 5 nm dans un substrat d'indice 1.45. . . . .	139
5.11	Pourcentage de collection en bout de pointe polymère du rayonnement d'un dipôle déposé dans une couche de diélectrique d'indice optique de $n=1.45$ . .	141
5.12	augmentation du taux de fluorescence total (sur $4\pi$ str), sous saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat. . . . .	143
5.13	Augmentation du taux de fluorescence dans la pointe, sous saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat. . . . .	143
5.14	augmentation du taux de fluorescence total, hors saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat. . . . .	145

5.15	Augmentation du taux de fluorescence dans la pointe, hors saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat. . . . .	145
5.16	Augmentation de l'intensité à l'endroit du dipôle pour la pointe BNA et la pointe polymère. . . . .	146
6.1	Schémas de (a) la pointe polymère, (b) la pointe à ouverture circulaire ( $\emptyset$ 60 nm), (c) la pointe à ouverture papillon de dimension $D=315$ nm et $G=45$ nm et (d) la pointe test à ouverture circulaire ( $\emptyset$ 220 nm), toutes les quatre excitées par un dipôle électrique transverse, positionné à 5 nm de l'apex. .	151
6.2	Spectre d'absorption des BQs utilisées en manipulation. . . . .	158
6.3	Spectre d'émission des BQs utilisées en manipulation. . . . .	158
6.4	Schéma du montage utilisé pour caractériser le couplage des BQs aux pointes champ proche. . . . .	161
6.5	Image MEB de la nano-ouverture papillon en bout de pointe pour la microscopie en champ proche utilisée en manipulation. . . . .	164
6.6	Evolution de la fluorescence collectée par la pointe BNA en fonction de la polarisation incidente du laser excitateur. . . . .	164
6.7	Schéma représentant les rendements quantiques et intensités en fonction de la polarisation incidente du laser excitateur. . . . .	165
6.8	Graphique représentant la fluorescence en fonction de la puissance du laser excitateur en mode continu. . . . .	166
6.9	Courbe de décroissance des BQs en bout de pointe diélectrique polymère. .	167
6.10	Courbe de décroissance des BQs en bout de pointe à nano-ouverture circulaire. . . . .	168
6.11	a) courbe de décroissance en fonction de la polarisation incidente, b) temps de vie de l'état excité en fonction de la polarisation incidente. . . . .	168
6.12	Schéma de la pointe polymère, excitée par un dipôle placé à 10 nm de l'apex, pour des rayons de courbure de 0.5, 0.75, 1, 1.25, 1.5 $\mu\text{m}$ . . . . .	171
6.13	Schéma de la pointe polymère, placé à $\lambda/4$ d'un miroir, excitée par un dipôle placé à 10 nm de l'apex, pour des rayons de courbure de 0.5, 0.75, 1, 1.25, 1.5 $\mu\text{m}$ . . . . .	175
6.14	(a) Spectre de transmission d'une BNA en fonction de l'épaisseur du métal, (b) intensité électrique normalisée en champ proche au centre du gap d'une BNA d'épaisseur 800 nm. . . . .	179
6.15	Schéma du système réflecteur, résonateur et directeur. . . . .	180
6.16	Réponse spectrale de la BNA pour une épaisseur de métal de 250 nm, des dimensions extérieures de 280 nm et un gap de 30 nm. . . . .	180
6.17	Intensité électrique à l'intérieur du gap pour (a) la longueur d'onde de 808 nm et (b) la longueur d'onde de 1550 nm. . . . .	180
6.18	augmentation du taux de fluorescence total, dans la pointe et dans la fibre pour le système en mode saturé. . . . .	183
6.19	Schéma du calcul de $I_e$ et $I_0$ , intervenant dans le calcul de l'augmentation de la fluorescence. . . . .	185
6.20	augmentation du taux de fluorescence total, dans la pointe et dans la fibre pour le système en mode non-saturé. . . . .	185

6.21	Intensité électrique d'une coupe longitudinale de la pointe en fonction de son rayon de courbure à $\lambda = 808$ nm, a) 500 nm, b) 750 nm, c) 1000 nm, d) 1250 nm, e) 1500 nm. . . . .	186
------	------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-----

---



# Introduction générale

Depuis les années 80, la microscopie optique en champ proche (SNOM pour Scanning Near-field Optical Microscopy) a révolutionné la microscopie optique en permettant le franchissement de la limite de résolution latérale définie par le critère de Rayleigh. Ce pas a été franchi grâce à l'exploitation des ondes évanescentes générées par diffraction, porteuses d'information sublongueur d'onde. La microscopie SNOM est basée sur l'utilisation de sondes en forme de pointe permettant de générer, de collecter ou de perturber des ondes évanescentes [25]. Dans chacun des cas, le principe d'imagerie repose sur le positionnement de l'extrémité de la pointe (l'élément "actif" de la pointe) à quelques nanomètres de la surface de l'échantillon.

Les sondes locales de la microscopie SNOM ont également été appliquées dans d'autres domaines tels que la nanolithographie optique, le stockage de données, la détection de molécules fluorescentes, etc. Ainsi, la microscopie SNOM a été étendue à la mise en œuvre d'une optique (un contrôle de la lumière) à l'échelle sublongueur d'onde. Elle a de ce fait été un des tremplins de la nano-optique (optique à l'échelle sublongueur d'onde) qui s'est développée et étendue grâce à l'apparition de nouvelles technologies de nanofabrication [26]. La nano-optique consiste à concevoir et développer des nano-systèmes capables de contrôler la lumière à l'échelle sublongueur d'onde. Parmi les grands axes de la nano-optique on compte la plasmonique [27], les cristaux photoniques [28] et les nano-antennes [29].

A l'heure actuelle, ces deux disciplines parentes souffrent chacune de problèmes non

---

résolus et de nouvelles voies scientifiques et technologiques sont à découvrir. Le problème majeur de la microscopie en champ proche reste l'interprétation des images. En effet, les sondes interagissent avec des distributions de champs électromagnétiques optiques complexes et une interprétation correcte des images passent par la connaissance exacte des composantes des champs optiques sondés (connaissance de la sensibilité électromagnétique des sondes). Des données contradictoires sont émises dans la littérature sur la sensibilité optique des sondes locales avec et sans ouvertures. Certains travaux affirment que ces sondes sont sensibles au champ électrique optique [30, 31] et d'autres affirment qu'elles sont sensibles au champ magnétique [32, 33]. Il apparaît donc que ces sondes développent une sensibilité mixte à ces deux champs. Cela est un vrai problème car à l'échelle sublongueur d'onde, les champs électrique et magnétique portent deux informations (images) différentes. De plus, la transmission de ces sondes est très faible, les rendements de transmission sont inférieurs à  $10^{-6}$ . Nous proposons dans la première partie de cette thèse de tirer parti des dernières avancées de la nano-optique afin d'apporter une solution innovante à cette problématique.

Parallèlement, le développement d'une nano-optique intégrée sur fibre optique demeure une voie quasi inexplorée mais à très forts potentiels applicatifs dans les domaines des télécommunications et de la biologie. Par exemple, un effort important a été déployé dans le contrôle fin de la fluorescence d'émetteurs quantiques par la structuration de leur environnement optique [13, 34]. En revanche, le couplage efficace des photons rayonnés au mode d'une fibre optique a fait l'objet d'un nombre très limité de travaux [35, 36]. Un grand nombre de configurations de la microscopie en champ proche repose sur le couplage optique de nanostructures au mode d'une fibre optique. C'est le cas de la microscopie SNOM en mode collection par la pointe [37]. Nous proposons dans une deuxième partie de cette thèse d'utiliser ces techniques, améliorées par le savoir-faire nouveau issu de la nano-optique, afin d'apporter des solutions innovantes à cette problématique "nano".

---

Cette thèse se décompose donc en deux parties distinctes :

**Dans la première partie**, nous allons tirer parti du concept de nano-antenne afin d'apporter une solution innovante au problème d'interprétation de la microscopie SNOM évoqué précédemment. En effet, il est connu que certaines nano-antennes développent des réponses optiques dipolaires. Elles sont donc supposées être sensibles au champ électrique exclusivement. Cette partie est divisée en 3 chapitres.

Dans un premier chapitre, je ferai un état de l'art sur les nano-antennes optiques et leur intégration à l'extrémité de sondes locales. Je terminerai cet état de l'art par la présentation de la configuration de nano-antenne, baptisée nano-ouverture papillon, qui sera appliquée et étudiée dans ce travail.

Dans un deuxième chapitre, je présenterai le cahier des charges relatif à la sonde locale fibrée proposée. Cette sonde consiste en une nano-ouverture à géométrie papillon, fabriquée au bout d'une sonde polymère métallisée à l'extrémité d'une fibre monomode (à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$ ). Cette sonde sera conçue de manière à détecter sélectivement (à  $\lambda=1.55 \mu\text{m}$ ) une composante vectorielle unique du champ proche électrique transverse. La simulation de la réponse optique de cette sonde à nano-antenne sera réalisée par la méthode numérique FDTD (Finite Difference Time Domain). Elle prendra en compte la nano-antenne mais également l'intégralité de la pointe sur laquelle elle est présente, ainsi qu'une petite portion de la fibre. Nous étudierons la géométrie de la nano-antenne résonante à  $\lambda=1.55 \mu\text{m}$ , la sensibilité électromagnétique de la sonde (sensibilité à une seule composante du champ électrique optique) et son pouvoir de résolution.

Dans le troisième chapitre, je présenterai la fabrication, la caractérisation et l'application de sondes locales SNOM fibrées à nano-ouvertures papillons. Ces sondes serviront à cartographier quatre types d'échantillons : (1) des échantillons diélectriques non résonants de type réseaux, (2) des cristaux photoniques à modes de Bloch lents (étendus) résonants avec un facteur de qualité (Q) très supérieur à celui de la nano-antenne, (3) des cristaux photoniques à modes de cavité (très confinés) dont le facteur de qualité est aussi

---

très supérieur à celui de la nano-antenne et (4) des couches d'or semi-continues au seuil de percolation présentant des résonances optiques (plasmoniques) très localisées spatialement et dont les facteurs de qualité sont équivalents à celui de la nano-antenne. Ces échantillons permettront de valider notre concept de nano-antenne comme une nanosonde SNOM électrique très performante.

**Dans la deuxième partie**, je présenterai l'étude de la sonde développée dans la première partie comme détecteur du signal émis par un nano-émetteur (NE) unique. Il sera donc question de l'effet de couplage entre ces deux objets. Ce couplage sera optimisé pour collecter efficacement l'information émise par un NE et, surtout, pour la guider efficacement à travers la fibre optique supportant la sonde. Cette partie est composée, comme la première, de trois chapitres.

Dans un premier chapitre, je ferai un état de l'art sur l'effet de couplage entre des NEs et différents milieux diélectriques ou métalliques placés à proximité (interfaces planes, nano-structures...). Il sera notamment décrit l'utilisation actuelle en microscopie SNOM de nano-antennes monopolaires dans le but d'augmenter la fluorescence de NE.

Dans un deuxième chapitre, je présenterai les grandeurs physiques caractéristiques d'un NE quantique (taux de décroissance, rendement quantique et taux de fluorescence) puis je présenterai la façon dont on peut déterminer ces grandeurs à travers des grandeurs classiques mesurables. Dans le même chapitre, j'étudierai théoriquement (par FDTD) le comportement d'un NE au contact d'une pointe à ouverture papillon similaire à celle présentée dans la première partie du manuscrit. Il sera notamment décrit l'influence de la distance entre le NE et la nano-ouverture sur l'émission de la nano-source. Je démontrerai que cette pointe, comparée à celle sans nano-antenne, diminue fortement le temps de vie de l'état excité d'un NE, tout en augmentant la fluorescence de ce dernier. J'illustrerai aussi le fait qu'une pointe polymère nue (sans antenne) possède de très bonnes propriétés de collection de l'énergie émise par un NE.

Dans un troisième chapitre, je présenterai une double étude théorique et expérimentale

---

du comportement de trois pointes différentes (pointe à ouverture circulaire, pointe polymère nue et pointe à nano-ouverture papillon) lorsqu'elles sont utilisées dans la détection de l'émission de boîtes quantiques (BQs). Je montrerai que la pointe à nano-ouverture papillon est celle des trois pointes qui diminue le plus le temps de vie de fluorescence. Enfin, je présenterai plusieurs études théoriques (par FDTD) de l'optimisation du couplage entre le signal émis par un NE et le mode guidé de la fibre optique. Je détaillerai en particulier l'influence du rayon de courbure des pointes SNOM sur leurs capacités de collection et je décrirai notamment un nouveau système performant permettant d'allier à la fois une forte augmentation de la fluorescence et un bon couplage à un mode de fibre optique.

De nombreuses applications pourront découler de ces études notamment en ce qui concerne la microscopie SNOM, les télécommunications ou la biologie moléculaire. Néanmoins, chaque application nécessitera une configuration propre de la sonde. Le manuscrit se termine par une conclusion générale sur le travail effectué accompagnée de plusieurs perspectives proposées dans le but d'apporter des améliorations aux différents dispositifs présentés.



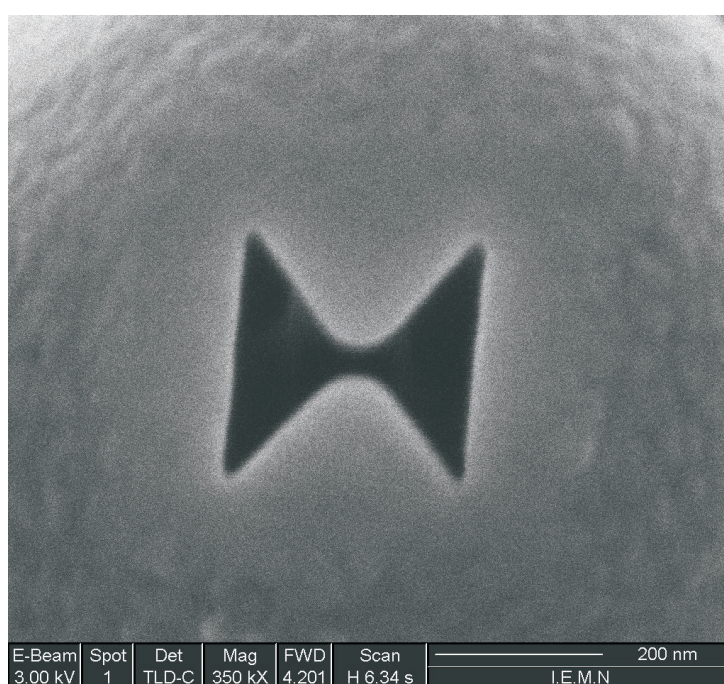


FIGURE 1 – Image FIB (Focused Ions Beam) d’une nano-ouverture à géométrie papillon en bout de pointe pour la microscopie en champ proche optique.

## Première partie

Nano-ouverture papillon comme  
nano-collecteur pour la microscopie  
champ proche optique

---



# Chapitre 1

## Etat de l'art des nano-antennes optiques

Dans ce chapitre nous présenterons un état de l'art des nano-antennes électriques et magnétiques, il sera décrit dans un premier temps un historique des antennes, puis nous parlerons des différentes nano-antennes magnétiques existantes à ce jour, ainsi que des nano-antennes électriques. Et enfin nous passerons en revue l'utilisation des nano-antennes électriques utilisées dans la microscopie optique en champ proche.

### 1.1 Historique et concept général

Depuis plus d'un siècle, les antennes sont utilisées de manière intensive pour les télécommunications par voie aérienne. Depuis Heinrich Hertz qui, en 1888, utilisa pour la première fois une antenne dipolaire pour émettre et recevoir des ondes électromagnétiques [38], l'évolution des antennes a été constante. Une multitude de configurations d'antennes ont vu le jour et nous accompagnent dans notre vie quotidienne, allant jusqu'à se loger au fond de nos poches grâce à la téléphonie mobile. D'une manière générale, les antennes sont des dispositifs capables de convertir efficacement un courant électrique en des ondes électromagnétiques, et vice versa [39, 40]. Leurs caractéristiques sont généralement déterminées par leurs formes spécifiques. Elles se définissent en termes de bande passante, de gain, de polarisation, d'impédance et de diagramme de rayonnement [40]. Il existe deux grandes familles d'antennes électromagnétiques, celles sensibles au champ électrique

---

et celles sensibles au champ magnétique. Parmi les antennes sensibles au champ électrique, on trouve l'antenne dipolaire [41, 42, 43, 44, 45, 46] (figure 1.1(a)), formée de deux tiges métalliques séparées par une distance très petite par rapport à la longueur d'onde, la dimension totale de l'antenne valant la demi longueur d'onde. On trouve également l'antenne monopolaire [47] (figure 1.1(b)), constituée d'une tige métallique de longueur égale au quart de la longueur d'onde, ainsi que l'antenne papillon [6], dérivée de l'antenne dipolaire mais possédant une bande passante plus large. N'oublions pas les antennes directives telles que l'antenne Yagi-Uda [48] et l'antenne cornet [47]. L'antenne Yagi-Uda (ou antenne râteau que l'on trouve sur les toits des habitations) est constituée d'une juxtaposition de bâtonnets métalliques sub-longueur d'ondes jouant le rôle de réflecteur et de directeur du rayonnement (figure 1.1(c)). L'antenne cornet peut être vue comme un guide d'onde métallique évasé en forme de cornet (figure 1.1(d)). Elle est très performante pour diriger le rayonnement vers des antennes paraboliques par exemple, et inversement, pour collecter les ondes électromagnétiques réfléchies et concentrées par la parabole.

Il existe également des configurations d'antennes sensibles au champ magnétique [49, 50], c'est le cas notamment de l'antenne boucle (ou "loop antenna") (figure 1.2). Cette antenne est constituée d'une boucle métallique qui, lorsqu'elle est traversée longitudinalement par un champ magnétique, génère un courant électrique azimuthal dans sa partie métallique. Inversement, un courant électrique parcourant la boucle métallique créera un champ magnétique longitudinal. Ces antennes ont l'avantage d'être beaucoup plus compactes que les antennes électriques.

Depuis quelques années, les progrès réalisés dans la fabrication à de très petites échelles [51] ont permis le développement d'une nouvelle branche de l'optique appelée nano-optique. De nombreux scientifiques se sont alors penchés sur la transposition vers l'optique d'effets jusque là bien connus en micro-onde et terahertz. Nous nous proposons d'étudier certains de ces nano-objets optiques. De cette transposition est née le concept

---



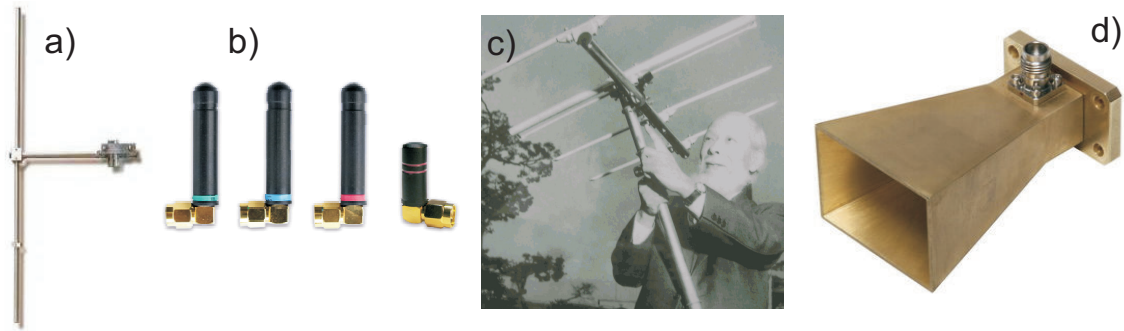


FIGURE 1.1 – Exemple d’antennes électriques : a) antenne dipolaire, b) antennes monopolaires, c) antenne Yagi-Uda (et son inventeur) et d) antenne cornet.



FIGURE 1.2 – Antenne boucle sensible au champ magnétique.

de nano-antenne, équivalent optique des antennes présentées auparavant. Traitons tout d’abord le cas des nano-antennes sensibles au champ magnétique.

## 1.2 Nano-antennes magnétiques

### 1.2.1 Nano-antenne annulaire

Par analogie avec l’antenne boucle des micro-ondes, il a été développé une nanostructure métallique annulaire (figure 1.3) [1, 2] capable de développer une résonance magnétique. Il a été prouvé théoriquement qu’une résonance de la nanostructure apparaissait lorsque celle-ci était, comme son homologue des hyperfréquences, excitée par un champ magnétique optique longitudinal (parallèle à l’axe de symétrie de la nano-antenne annulaire). Dès lors il est apparu qu’en plaçant une telle antenne en bout de pointe pour la microscopie champ proche, il était possible de ne détecter que l’information portée par cette

composante. Ce dernier point est très important pour notre travail puisqu'il a en partie motivé l'étude qui va suivre [52].

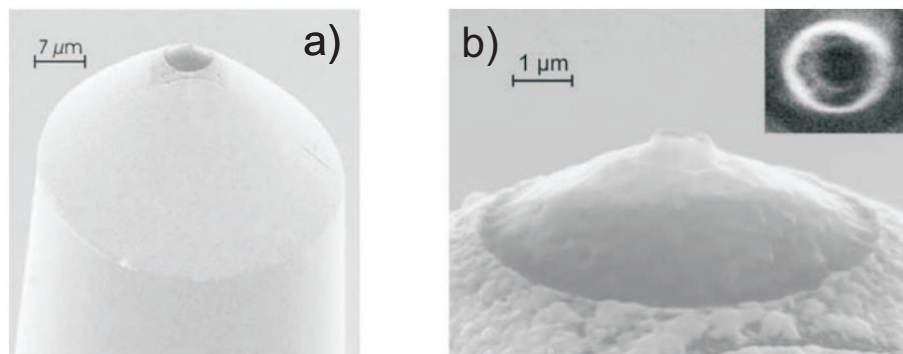


FIGURE 1.3 – Image MEB (microscope électronique à balayage) de a) l'antenne annulaire en or en bout de sonde locale pour la microscopie en champ proche optique b) agrandissement de l'apex, d'après [1, 2].

### Nano-antenne diablo

En s'inspirant du principe de babinet [53]; qui dit que les champs électromagnétiques diffractés par une ouverture faite dans une couche infiniment fine de métal parfait, sont les mêmes que ceux diffractés par la structure complémentaire, si le champ magnétique est remplacé par le champ électrique et vice versa. Une étude théorique a été menée au Département d'Optique P. M Duffieux de Besançon. En utilisant deux configurations de nano-antennes électriques de type géométrie papillon [54, 55], des configurations de nano-antennes magnétiques baptisées "diabolo" ont vu le jour. La nano-antenne diabolo est la structure complémentaire de la BNA (Bowtie nano-aperture) [55] (figure 1.4 a) et b)). Elle est constituée de deux triangles métalliques connectés par un gap métallique permettant aux charges accumulées dans chaque triangle de circuler entre ces derniers. Lorsque cette antenne est excitée par une onde polarisée comme indiqué sur la figure 1.4 c), un fort courant se crée à l'intérieur de la jonction métallique, développant à son tour par induction optique un fort champ magnétique polarisé azimuthalement autour de la jonction métallique considérée [56]. Ce champ magnétique se trouve alors très confiné

sur la zone de la jonction métallique entre les 2 triangles et son facteur d'exaltation est très supérieur à celui du champ électrique (qui lui est localisé sur les coins de l'antenne). L'intensité magnétique décroît exponentiellement lorsque l'on s'éloigne de la jonction. Une telle antenne pourrait trouver des applications dans différents domaines telles que la spectroscopie magnétique optique ou encore la détection du champ magnétique. [1].

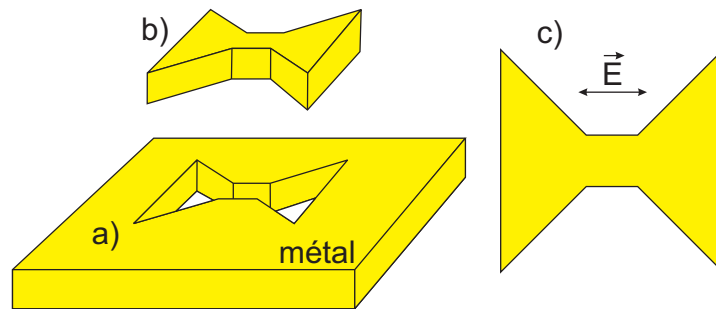


FIGURE 1.4 – Shéma de a) la nano-ouverture à géométrie papillon, b) et c) l'antenne diablo.

## 1.3 Nano-antennes électriques

### 1.3.1 La nano-antenne dipolaire

La nano-antenne dipolaire fut l'une des premières nano-antennes proposées dans la littérature [3, 57, 58, 59]. Comme sa grande sœur issue des basses fréquences (radio, micro-onde), elle est constituée de deux bâtonnets métalliques alignés selon leur grand axe et espacés d'une distance très faible par rapport à la longueur d'onde (appelée "gap") (figure 1.5). En revanche, les métaux devenant absorbants aux longueurs d'onde optiques (ils ne sont plus parfaitement conducteurs comme aux basses fréquences), la géométrie des nano-antennes dipolaires n'est pas l'exacte réplique homothétique des antennes basses fréquences. Par exemple, la longueur d'onde de résonance de la nano-antenne dipolaire n'est plus strictement le double de sa longueur totale. Cette conclusion est en fait généralisable à toutes les configurations de nano-antennes optiques. Le design des nano-antennes nécessite des simulations numériques poussées prenant en compte la dispersion chromatique des mé-

taux. Lorsqu'elle est excitée par une onde polarisée linéairement selon son grand axe de symétrie et à sa longueur d'onde de résonance, la nano-antenne dipolaire génère une forte exaltation de champ électrique optique au niveau du gap nanométrique. Une telle concentration lumineuse, généralement appelée "point chaud", est due à un fort couplage des deux bâtonnets métalliques qui se manifeste par un effet capacitif optique au niveau du gap. Cet effet capacitif est à l'origine de l'exaltation du champ électrique et des propriétés dipolaires électriques de la nano-antenne. Lorsque la polarisation incidente devient perpendiculaire à l'axe de l'antenne, le point chaud disparaît. L'augmentation du champ électrique est telle que des effets non linéaires comme la génération de supercontinuum peuvent avoir lieu au sein de ce type de nano-antennes [3]. Ces antennes sont également utilisées pour le piégeage optique [60] et la spectroscopie par luminescence à deux photons [61].

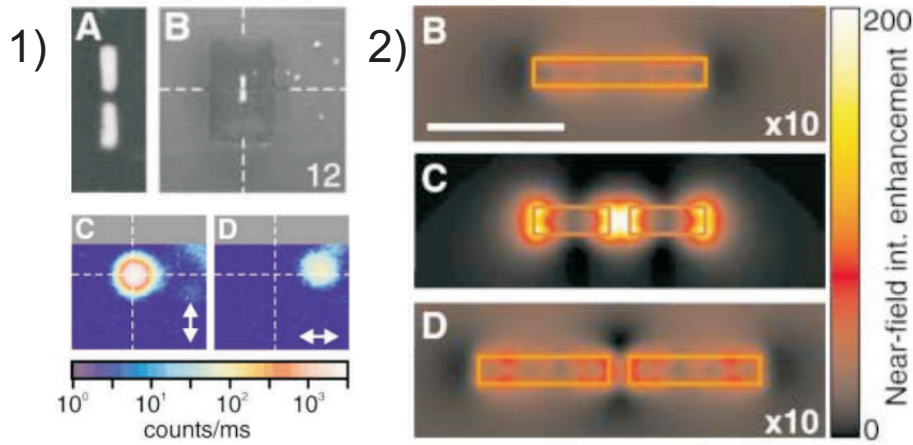


FIGURE 1.5 – 1) A et B, images MEB de la nano-antenne dipolaire, 1) C et D, puissance émise par le dipôle en champ lointain en fonction de la polarisation incidente. 2) B, C, D, intensité électrique théorique champ proche à la longueur d'onde de 830 nm pour différentes géométries d'antenne [3].

### La nano-antenne monopolaire

Afin de faire le lien entre les nano-antennes sensibles au champ électrique et la microscopie en champ proche, nous nous proposons de décrire un système faisant intervenir ces deux concepts. C'est le cas de la nano-antenne monopolaire en bout de pointe fibrée

de la microscopie en champ proche (figure 1.6) [4, 62, 63]. Ces nano-antennes sont des petits bâtonnets de longueur à peu près égale au quart de la longueur d'onde de l'onde excitatrice. Elles permettent de générer une concentration lumineuse intense, polarisée longitudinalement, et très localisée au niveau de leurs extrémités. Ces antennes ont été appliquées à l'imagerie par microscopie en champ proche de molécules uniques (sources nanométriques dipolaires) déposées sur un substrat [4]. Ces nano-antennes ont également la propriété remarquable d'influer sur l'émission dipolaire des molécules [63]. Lorsque la nano-antenne est au contact d'une molécule, l'émission des photons est dictée par le diagramme d'émission de la nano-antenne et plus de celui de la molécule. La proximité de l'antenne modifie donc drastiquement l'émission à la fois au niveau du rayonnement mais également du point de vue de la fluorescence du nano-émetteur (NE). Nous reviendrons par la suite sur ce point dans ce manuscrit. Cet article est un bon exemple de l'utilisation qui peut être faite des nano-antennes en microscopie en champ proche.

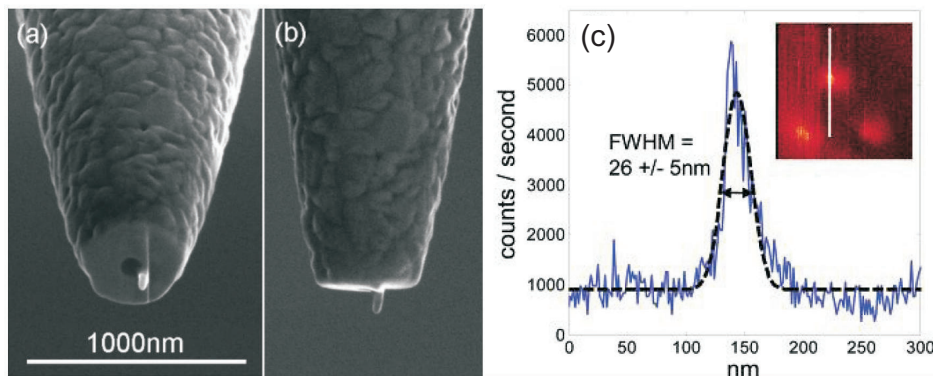


FIGURE 1.6 – a) et b) Images MEB d'une nano-antenne monopolaire en bout de pointe en champ proche optique, c) image SNOM et section du profil d'intensité d'une molécule unique détectée par la nano-antenne monopolaire [4].

### La nano-antenne Yagi-Uda

Comme son homologue issue des basses fréquences, la nano-antenne Yagi-Uda [5, 64, 65, 66] est constituée par une succession de bâtonnets métalliques de taille sub-longueur d'onde (figure 1.7 a)). Ces nano-antennes ont pour but de rediriger l'émission de nano-sources lumineuses quantiques (molécules fluorescentes, quantum dots). Leur émission di-

polaire typique est transformée en une émission unidirectionnelle et très directive (figure 1.7 b)). Cette nano-antenne est constituée d'un batonnet métallique permettant de coupler efficacement les émetteurs quantiques à l'antenne optique (appelé "Feed"), d'un ou plusieurs bâtonnets plus grand placé(s) à côté du batonnet feed jouant le rôle de réflecteur du rayonnement, et d'une série de bâtonnets plus petits placés de l'autre côté du feed dont les dimensions et l'écartement permettent de rediriger le rayonnement dans la direction souhaitée. Cette antenne permet d'envisager des systèmes complexes de communication entre des NEs quantiques.

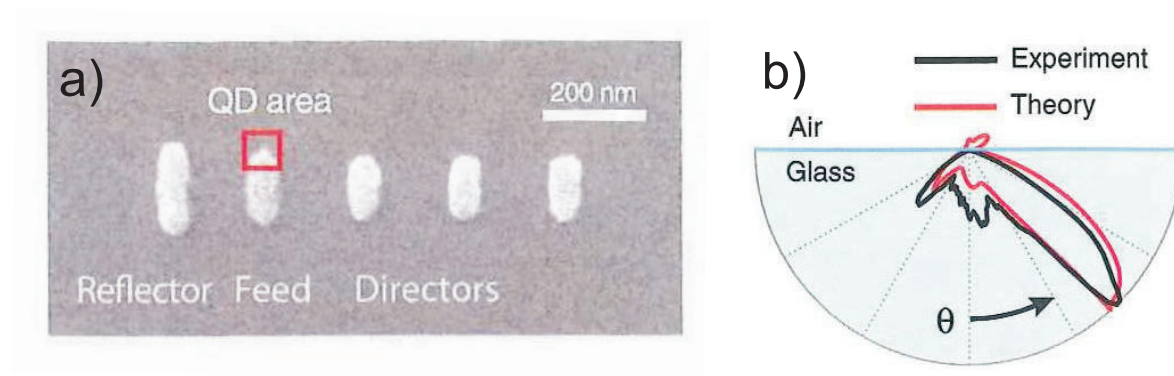


FIGURE 1.7 – a) Image MEB d'une nano-antenne Yagi-Uda, b) Diagramme de radiation de l'antenne Yagi-Uda [5].

### La nano antenne papillon

Nous allons maintenant nous intéresser à une famille spécifique de nano-antennes, les nano-antennes à géométries papillons, elles-mêmes divisées en deux groupes, les nano-antennes papillons (où bowtie) et les nano-ouvertures papillons. Ce sont ces dernières auxquelles nous nous intéresserons tout particulièrement.

Les nano-antennes papillons ont été introduites par Grober [6] en 1997 (figure 1.8). Il démontra que dans le régime micro-onde il était possible d'obtenir un confinement de champ électrique sub-longueur d'onde tout en gardant une transmission proche de 100 %. C'est à notre connaissance la première configuration d'antenne papillon développée. Les



nano-antennes papillons sont constituées de deux triangles métalliques séparés par une distance (ou "gap") nanométrique [7, 67, 68, 69, 70] (figure 1.9). Tout comme les nano-antennes dipolaires, ces structures génèrent un point chaud au niveau du gap lorsqu'elles sont excitées par une onde polarisée linéairement selon l'axe parallèle aux deux triangles. Cette augmentation localisée du champ électrique optique au niveau du gap est due à un effet capacitif entre les deux triangles. Le point chaud disparaît pour une polarisation perpendiculaire [54]. De telles structures ont été décrites notamment par Fischer et al [71]. Ces antennes ont été appliquées en photolithographie [68], dans la génération de seconde harmonique [67], le couplage à des boîtes quantiques [21] et la spectroscopie Raman [72].

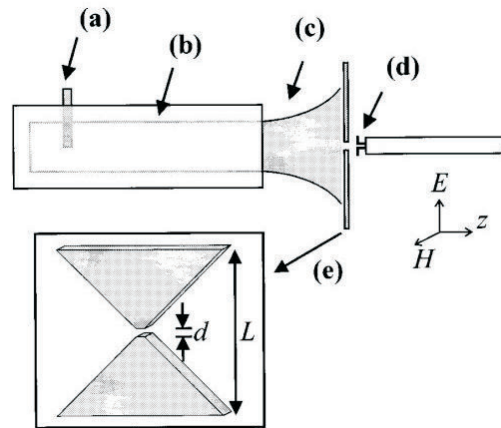


FIGURE 1.8 – Schéma de l'antenne bowtie utilisé en micro-ondes par Grober. [6].

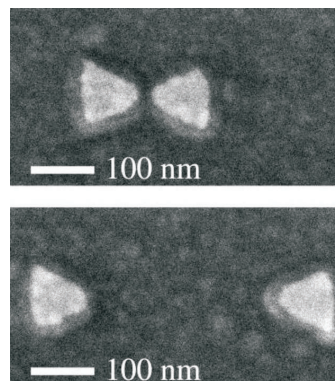


FIGURE 1.9 – Image MEB d'une nano-antenne papillon [7].

La longueur d'onde de résonance de telles structures est également fortement dépen-

dante de leurs géométries [71] (figure 1.10).

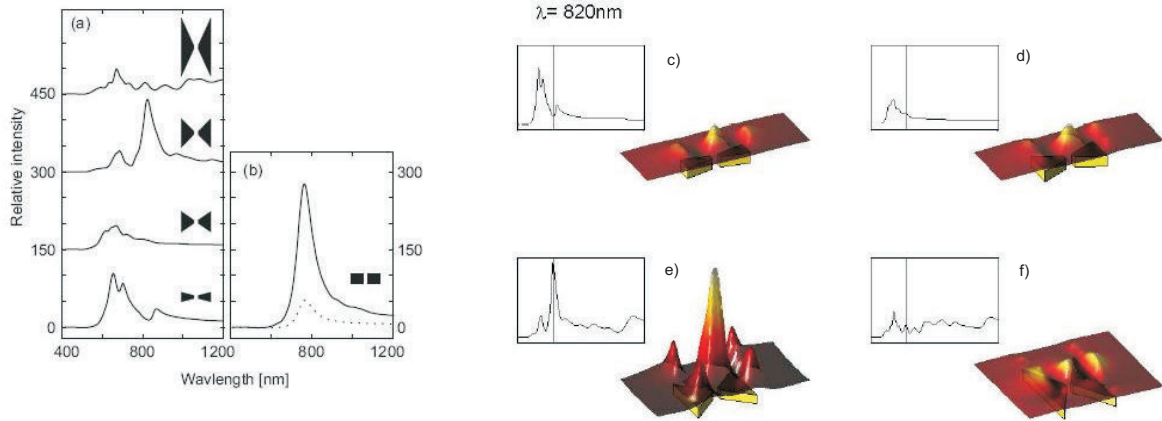


FIGURE 1.10 – a) et b) Réponses spectrales pour différentes géométries de nano-antennes papillons et dipolaire, c), d), e), f) Intensité lumineuse champ proche au dessus d'une nano-antenne papillon en fonction de ses dimensions à la longueur d'onde de 820 nm. [6].

### La nano-ouverture papillon

Intéressons nous maintenant aux nano-ouvertures papillons [8, 55, 73, 74, 75, 76, 77]. Elles ont été présentées comme les structures complémentaires des nano-antennes papillons (figure 1.11). Il a été prouvé aussi bien théoriquement qu'expérimentalement que ces nano-ouvertures papillons (BNA : bowtie nano-aperture), à l'instar des antennes papillons et dipolaires, possèdent des propriétés optiques de confinement, d'exaltation du champ électrique optique et de sensibilité à la polarisation [8]. Il a également été démontré, comme pour les nano-antennes papillons, que la longueur d'onde de résonance de la structure dépend fortement des dimensions du gap et des "ailes" métalliques de l'ouverture papillon [9, 10] (figure 1.12). Par contre, si la résonance des nano-antennes est d'origine plasmonique, il a été démontré que celle des ouvertures est associée à l'excitation de modes guidés à travers l'épaisseur de la structure [9]. Ainsi, deux causes physiques distinctes (modes plasmons pour la nano-antenne et mode guidé pour la nano-ouverture) produisent les mêmes effets sur le comportement optique des structures (confinement et augmentation du champ électrique, sensibilité à la polarisation). La dépendance à la polarisation de ces structures sera très utile pour la suite.



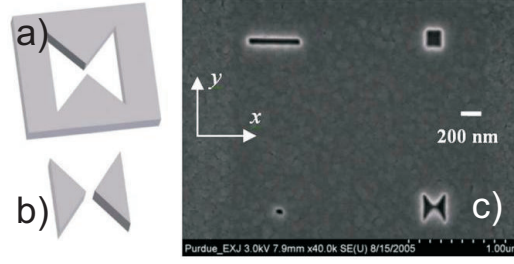


FIGURE 1.11 – a) schéma d’une ouverture papillon, b) schéma d’une antenne papillon et c) image MEB d’une ouverture papillon (en bas à droite) [8].

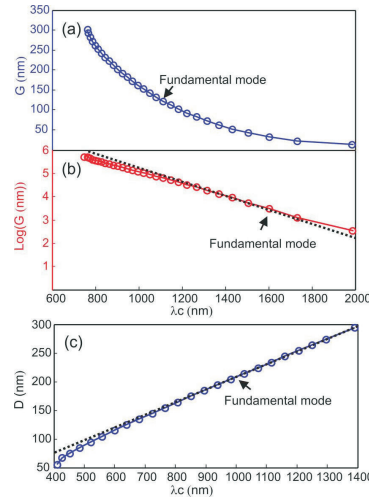


FIGURE 1.12 – a), b), c) Longueur d’onde de résonance du mode fondamentale de la BNA en fonction de a) la dimension du gap, b) du logarithme du gap, c) de la largeur extérieure de l’ouverture [9, 10].

Les nano-ouvertures papillons ont été utilisées pour des applications en lithographie [55, 78] et en imagerie [79].

### Utilisation des nano-antennes papillon en microscopie champ proche

De telles structures ont déjà été utilisées comme sonde ; c’est le cas dans l’étude de Farahani et al [21] qui plaça à l’extrémité de pointes pyramidales sur micro-levers utilisées en microscopie AFM (Atomic Force Microscopy), une antenne à géométrie papillon pour la détection de boîtes quantiques (BQs) uniques déposées sur substrat. En plus de la détection des BQs, il démontra que la présence de l’antenne à leurs proximités pouvait fortement faire décroître le temps de vie de celles-ci, pendant que dans le même temps la photoluminescence, augmentait drastiquement (en régime de saturation) (figure 1.13).

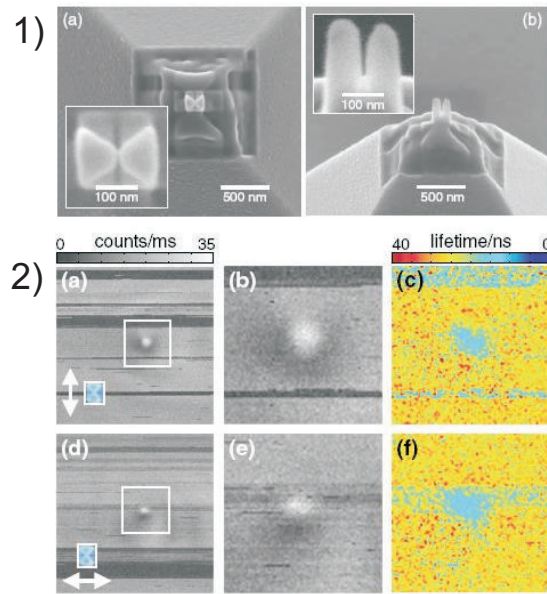


FIGURE 1.13 – 1) a et b Image MEB de la nano-antenne papillon en bout de pointe AFM, 2) a, b, d, e, nombre de photons collectés par ms lors d'un scan d'une boîte quantique par la pointe et 2) c, f, temps de vie de l'état excité du nano-emetteur lors du scan de celui-ci par la nano-antenne.

Autre exemple d'utilisation d'une ouverture papillon, l'équipe de Xianfan Xu (Purdue University), utilisa une pointe AFM possédant à son extrémité une BNA fabriquée par FIB, afin d'inscrire sur une résine photosensible des motifs d'une largeur inférieure à 24 nm par photolithographie [78] (figure 1.14).

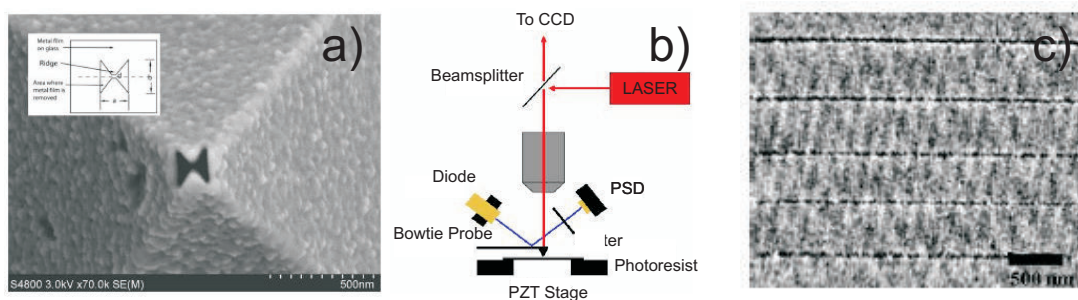


FIGURE 1.14 – a) Image MEB de la BNA en bout de pointe AFM, b) système d'illumination de la pointe champ proche pour créer le confinement à l'intérieur de l'ouverture, c) image AFM des gravures lithographiques obtenues grâce à ce système.

Les nano-ouvertures papillons sont très adaptées à une intégration en bout de pointe

métallisée car elles nécessitent un enlèvement de matière minimal par FIB. Il s'agit en effet d'ouvertures creusées dans une couche métallique et non de nanoparticules métalliques qu'il faut isoler optiquement du reste de la couche métallique initialement déposée sur la pointe. La conservation des flancs de pointes métallisées (donc opaques) après usinage des nano-ouvertures permet d'obtenir des rapports signal-à-bruit très importants (il n'y a pas de fond continu dans les processus optiques liés aux nano-ouvertures sur pointes). De plus, les nano-ouvertures papillons possèdent des comportements et performances optiques similaires aux nano-antennes papillons et dipolaires. Elles confinent et augmentent le champ électrique optique au niveau de leur gap. Elles développent également une forte sensibilité à la polarisation du champ incident : les propriétés optiques sont celles d'un dipôle. Ces propriétés ont motivé le choix de cette nano-ouverture papillon comme interface électrique optique polarisante entre des nano-objets et une fibre optique. Nous démontrerons dans les deux chapitres suivants que la BNA sur pointe fibrée peut jouer le rôle de nano-sonde polarisante pour la microscopie optique en champ proche.

---



## Chapitre 2

# Étude théorique d'une BNA intégrée sur fibre optique pour la microscopie en champ proche optique

Dans ce chapitre nous présenterons l'étude théorique d'une nano-ouverture papillon unique (BNA : Bowtie nano-aperture) placée en bout de sonde locale fibrée pour la microscopie en champ proche optique. Pour commencer nous donnerons le cahier des charges de notre système fibré, puis le type de simulations effectuées et enfin les résultats théoriques obtenus, telles que les capacités de polarisation et de résolution de cette pointe ainsi que certaines propriétés de résonance de la BNA en bout de pointe.

### 2.1 Cahier des charges

Cette étude s'inscrit dans le cadre du projet ANR numéro ANR-07-NANO-036 intitulé NANOEC : Nano-Antennas for the Optical Electromagnetic nanocollection. Son objectif est de concevoir, étudier et appliquer une BNA à l'extrémité d'une pointe fibrée pour la microscopie en champ proche optique. La pointe en champ proche qui a été choisie pour cela est une pointe polymère métallisée de  $30\text{ }\mu\text{m}$  de long et de rayon de courbure de  $500\text{ nm}$  (figure 2.1). La pointe diélectrique est recouverte d'une couche d'aluminium de  $100\text{ nm}$  d'épaisseur. L'indice optique du polymère utilisé vaut  $1,52$ . La pointe finale greffée d'une nano-antenne devra respecter plusieurs critères. Tout d'abord, elle devra présenter la meilleure résolution et la meilleure transmission (efficacité de collection) possible. Sa plage

---

spectrale de travail doit être contenue dans les longueurs d'onde des télécommunications. Le pic de résonance de la nano-antenne doit être centré sur la longueur d'onde  $1.55 \mu\text{m}$ . Cette sonde devra être capable de discriminer une seule composante du champ électrique optique parmi le champ proche électromagnétique vectoriel à la surface d'échantillons. Elle ne devra être sensible qu'à une seule composante du champ électrique. Le choix de la BNA comme nano-sonde optique a été motivé par le fait que cette nano-antenne n'est sensible qu'à une seule composante du champ électrique optique parallèle à ses ailes métalliques. L'effet capacitif qui a lieu au niveau du gap induit un moment dipolaire électrique qui définit ses propriétés de concentration et d'émission de la lumière. Cette antenne est donc le siège d'effets optiques électriques (exaltation sélective du champ électrique). Ces propriétés ont été démontrées en mode émission : la nano-antenne concentre et augmente le champ électrique optique. Nous allons les démontrer en mode collection : la nano-antenne, plongée dans le champ proche optique, convertit l'information sub-longueur d'onde majoritairement évanescente en ondes propagatives collectées par la pointe et transmises par la fibre optique vers un détecteur, de manière à restituer une cartographie fidèle du champ électrique optique au voisinage de nanostructures.

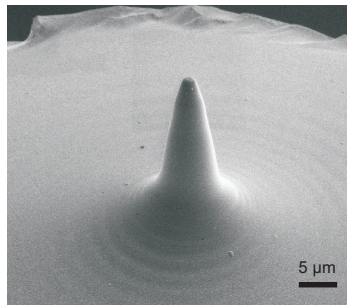


FIGURE 2.1 – Image par microscope électronique à balayage (MEB) de la pointe polymère métallisée en bout de fibre optique monomode (SMF-28e).

## 2.2 Etude théorique

Pour cette étude théorique, nous avons pris soin de prendre en compte les contraintes technologiques de fabrication des pointes à nano-antennes. Tout d'abord, l'entreprise Lovalite,

---

responsable dans le projet ANR de la fabrication des pointes supports des nano-antennes, nous a fait part de la difficulté de métalliser leurs pointes avec une épaisseur de métal supérieure à 100 nm. Au delà, le métal cristallise en bout de pointe sous forme d'agrégats pouvant atteindre des tailles de 100 nm (figure 2.2). Ensuite, la réalisation de la BNA ne peut être effectuée que par FIB (Focused Ions Beam). Il s'agit donc de choisir des dimensions d'ouvertures réalistes en bout de pointe par ce procédé. La résolution du FIB à notre disposition étant dans le meilleur des cas égale à 25 nm, nous ne pourrions choisir de plus petites dimensions. Par ailleurs, le rayon de courbure du bout de la pointe valant 500 nm (figure 2.1), il serait déraisonnable, si l'on souhaite que l'ouverture joue correctement son rôle de nano-sonde polarisante, de choisir des largeurs d'antennes supérieures à celui-ci. Enfin, il a été décidé que les pointes fibrées seraient métallisées à l'aluminium. Un tel choix a été motivé par la nature fortement conductrice de l'aluminium aux longueurs d'onde de l'infrarouge, par les faibles rugosités de surface des couches déposées, et enfin par l'expérience de Lovalite pour le dépôt de ce métal sur pointe.

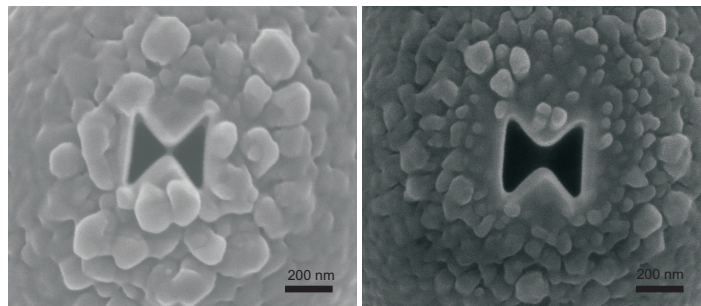


FIGURE 2.2 – Images MEB du bout de deux pointes en champ proche métallisées avec une couche d'aluminium d'épaisseur supérieure à 100 nm.

Tenant compte de ces contraintes, nous allons maintenant pouvoir concevoir notre sonde de microscopie en champ proche pour qu'elle satisfasse notre cahier des charges.

Tout d'abord, comme nous l'avons vu précédemment dans les études qui ont été faites sur les nano-ouvertures papillons [9, 10], leurs longueurs d'onde de résonance, où se trouve des maxima de transmission, dépendent uniquement de leurs géométries (à métal fixé).

Etant donné que nous voulons utiliser cette sonde à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$ , il nous faut trouver les dimensions d'ouverture nous donnant une résonance à cette longueur d'onde.

Pour cela nous utilisons un modèle théorique, celui-ci sera effectué par la méthode FDTD (Finite Diference Time Domain) [80]. Cette méthode de calcul consiste à discrétiser numériquement l'espace et le temps de manière à résoudre les équations de Maxwell (2.1)-(2.4), non plus grâce à des dérivées partielles mais par des différences finies, il est montré à titre d'exemple sur la figure 2.3 le passage des dérivées partielles aux différences finies de l'équation (2.1). La figure 2.4 représente une cellule élémentaire de maillage (de discrétisation) de l'espace dans laquelle les champs optiques sont calculés au cours du temps. La méthode FDTD est détaillée dans la référence [81]. La description de cette méthode ne sera pas traitée dans ce manuscrit. La FDTD a été décrite de nombreuses fois dans le cadre de thèses précédentes [82].

$$\nabla \times E(r, t) = -\frac{\partial B(r, t)}{\partial t} \quad (2.1)$$

$$\nabla \times H(r, t) = -\frac{\partial D(r, t)}{\partial t} + j(r, t) \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot D(r, t) = \rho(r, t) \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot B(r, t) = 0 \quad (2.4)$$

Il ne reste plus ensuite qu'à définir à l'intérieur de la fenêtre de calcul les différentes parties de la structure à modéliser. Cela est fait en affectant à chaque cellule du maillage (ou cellule de Yee) une constante diélectrique réelle ou complexe selon que le matériau modélisé est diélectrique ou métallique. Nous définissons enfin le type de source rayonnant au voisinage des objets modélisés. Avec la FDTD, il est possible de générer toutes sortes

---



$$\begin{aligned}
H_x^{n+1/2}(i, j, k) &= H_x^{n-1/2}(i, j, k) + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left[ \frac{E_y^n(i, j, k+1) - E_y^n(i, j, k)}{\Delta z} \right. \\
&\quad \left. - \frac{E_z^n(i, j+1, k) - E_z^n(i, j, k)}{\Delta y} \right] \\
H_y^{n+1/2}(i, j, k) &= H_y^{n-1/2}(i, j, k) + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left[ \frac{E_z^n(i+1, j, k) - E_z^n(i, j, k)}{\Delta x} \right. \\
&\quad \left. - \frac{E_x^n(i, j, k+1) - E_x^n(i, j, k)}{\Delta z} \right] \\
H_z^{n+1/2}(i, j, k) &= H_z^{n-1/2}(i, j, k) + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left[ \frac{E_x^n(i, j+1, k) - E_x^n(i, j, k)}{\Delta y} \right. \\
&\quad \left. - \frac{E_y^n(i+1, j, k) - E_y^n(i, j, k)}{\Delta x} \right]
\end{aligned}$$

FIGURE 2.3 – Différences finies de l'équation aux dérivées partielles (2.1).

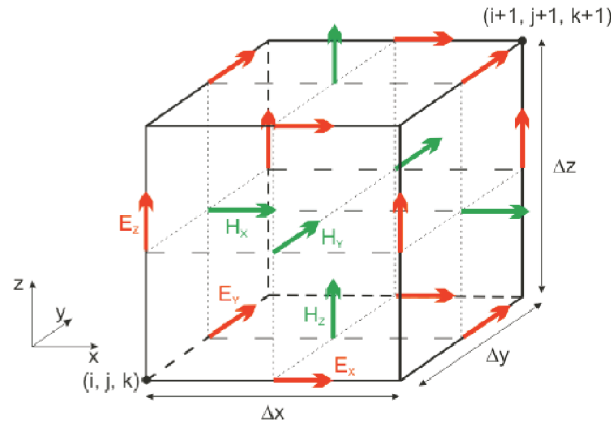


FIGURE 2.4 – Cellule de Yee, représentant la discrétisation de l'espace dans le modèle numérique et la répartition du champ électromagnétique dans cette cellule.

de sources électromagnétiques, allant de l'onde plane au faisceau gaussien en passant par des dipôles électriques et magnétiques. La fenêtre de calcul est ensuite entourée de cellules de PML (perfectly matched layer) [83]. Cette PML est une couche qui absorbera toutes les ondes électromagnétiques sortant de la fenêtre de calcul, de manière à empêcher toute réflexion parasite à l'intérieur de celle-ci. Le maillage spatial à l'intérieur de la fenêtre peut être non-uniforme, ce qui permet de définir avec une plus grande précision certaines parties de la simulation (par exemple l'entrefer de la BNA).

### 2.2.1 Géométrie de nano-ouverture papillon résonante à $\lambda=1.55 \mu\text{m}$

Les simulations effectuées pour trouver cette géométrie ont été réalisées pour une BNA sur substrat plan en mode émission. Celle-ci était illuminée en champ lointain par une onde plane et sa réponse spectrale était calculée en champ proche au centre du gap. Pour cela nous avons utilisé un code FDTD 3D développé par Mr Fadi Baida et disponible au sein de notre équipe. Le modèle de la nano-ouverture considéré dans le cadre de cette première étude consiste en un substrat plan d'indice optique 1.52 sur lequel repose une couche d'aluminium d'épaisseur 100 nm, d'indice  $n=1.4443 + i*15.9572$  à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$ . Une ouverture à géométrie papillon est modélisée en définissant dans la couche métallique, sur toute son épaisseur, un motif d'indice optique égal à 1 en forme de nœud papillon (figure 2.5). Cette structure est excitée par une onde plane incidente du côté du substrat. Cette onde est décrite temporellement par une impulsion comme montré sur la figure 2.6. Par dichotomie, ces simulations ont révélé que la nano-ouverture résonne à une longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$  en champ proche (spectre calculé au centre du gap de l'ouverture, à une hauteur de 10 nm) pour des dimensions de  $D=315 \text{ nm}$  et  $G=45 \text{ nm}$  (figure 2.5 et 2.7), ces dimensions sont compatibles avec une fabrication par FIB au bout de la pointe en champ proche décrite précédemment. Cette étude nous donne une première idée du comportement de cette nano-ouverture, notamment sur son facteur d'exaltation qui était pour cette antenne de 190, mais également sur son facteur de qualité, valant ici 5. Cette antenne a donc un facteur de qualité assez faible, ce qui fait d'elle un résonateur plutôt large bande, c'est à dire qu'elle pourra être utilisée sur un spectre assez large de longueur d'onde.

### 2.2.2 Etude théorique des propriétés de collection d'une pointe SNOM fibrée présentant une BNA à son extrémité.

Nous nous sommes ensuite intéressés aux propriétés de collection locale de la BNA. Il ne s'agit plus ici de l'exciter en champ lointain de manière à créer un point chaud au niveau

---

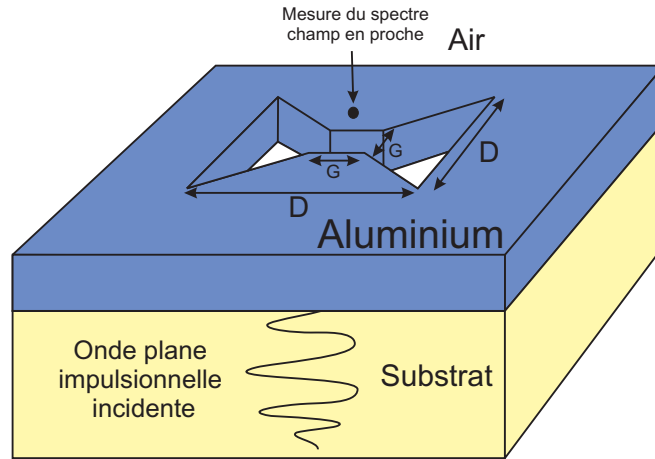


FIGURE 2.5 – Schéma de la BNA dans une couche plane d'aluminium.

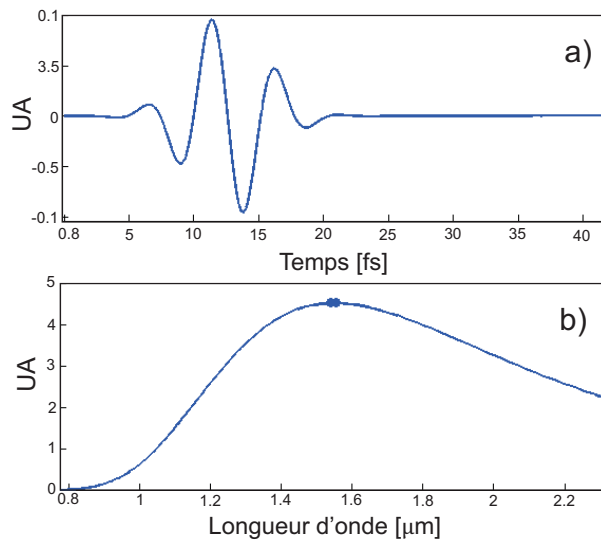


FIGURE 2.6 – a) Pulse temporel excitant la BNA, b) Spectre optique correspondant à l'impulsion.

du gap, comme la majorité des études réalisées jusqu'à présent, mais l'exciter en champ proche pour qu'elle génère des ondes propagatives qui sont collectées par la pointe puis guidées à travers la fibre optique vers un détecteur.

De façon à être le plus précis possible, ces simulations devaient prendre en compte la totalité de la pointe, c'est-à-dire aussi bien le début de la fibre optique, les 30 microns de la pointe et bien entendu l'ouverture papillon à son extrémité (figure 2.9). La fenêtre de calcul devait ainsi posséder des zones de maillage plus ou moins fines, allant de 5 nm de largeur

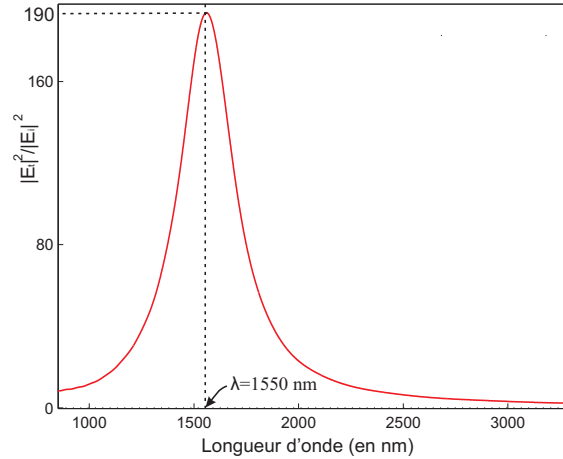


FIGURE 2.7 – Spectre normalisé de l'intensité électrique en champ proche au centre du gap d'une BNA de dimensions  $D=315$  nm et  $G=45$  nm, gravée dans une couche plane d'aluminium d'épaisseur 100 nm.

de cellule autour de l'ouverture papillon à 25 nm pour le reste de la simulation (à noter que de semblables paramètres de maillage seront utilisées pour toutes les simulations) ; soit un total d'environ 470 millions de points de calcul. Malheureusement, aucune des stations de calcul présentes à Besançon n'étaient capables de supporter de tels volumes numériques. Je suis donc parti, au début de ma thèse, au centre de recherche d'IBM à Almaden en Californie, de manière à avoir accès à un supercalculateur BlueGene (figure 2.8).



FIGURE 2.8 – Image du montage du super-calculateur BlueGene.

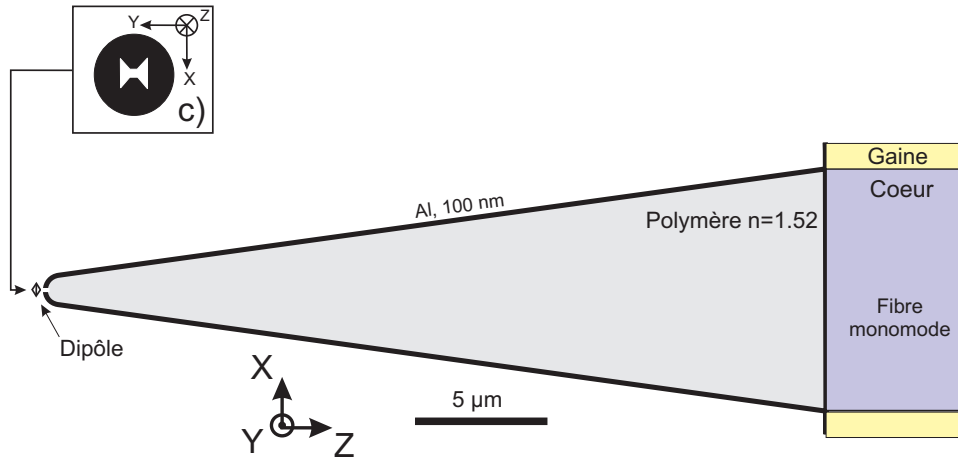


FIGURE 2.9 – Schéma de la pointe à ouverture papillon modélisée sur le super-calculateur BlueGene, excitée par un dipôle centré sur le gap de la BNA, à 10 nm de celle-ci.

Pour cette étude en mode collection, nous avons fait le choix d'utiliser un dipôle électrique orienté parallèlement aux ailes du papillon (selon l'axe ( $Ox$ ) dans notre étude) et placé à 10 nm de l'ouverture au centre du gap (figure 2.9). La nano-ouverture, quant à elle, gardait les mêmes dimensions que pour le calcul en mode émission effectué à l'institut FEMTO-ST. Pour le mode collection, le calcul du spectre se faisait en bout de pointe, à l'intérieur de la fibre optique, à travers une surface de côté englobant son cœur (que nous appellerons la surface  $\Pi$ ). Ce spectre était obtenu par une transformée de Fourier donnant la puissance traversant cette surface en fonction de la longueur d'onde.

Comme le montre la figure 2.10, le pic de résonance pour un dipole orienté selon ( $Ox$ ) est inchangé, la sonde présente donc les mêmes propriétés spectrales en mode collection qu'en mode émission : même longueur d'onde de résonance et même facteur de qualité ( $Q=5$ ). Notons que la puissance collectée par la pointe se trouve être supérieure à la puissance émise par le même dipôle dans le vide. Nous reviendrons sur ce point dans la deuxième partie de ce manuscrit. En outre, le facteur de qualité de la résonance en mode collection vaut également 5, ce qui confirme la bonne corrélation entre le mode émission et le mode collection. Une première partie des objectifs fixés est donc remplie, à savoir que la sonde soit conçue pour travailler à la longueur d'onde télécom ( $1.55 \mu m$ ).

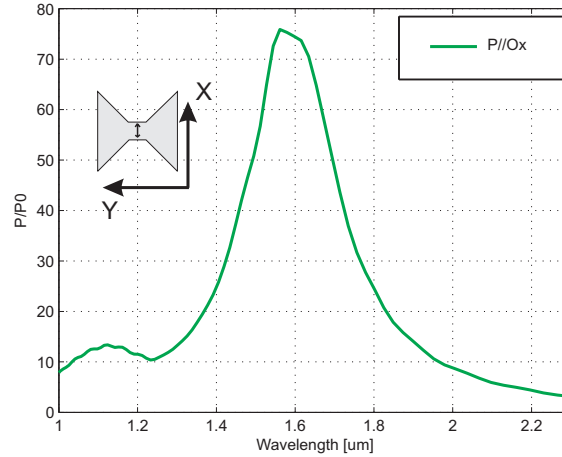


FIGURE 2.10 – Réponse spectrale du signal collecté par la pointe BNA pour une excitation par un dipôle électrique orienté parallèlement aux ailes du papillon. A noter que la valeur en ordonné est normalisée par la puissance totale émise par le dipôle dans le vide.

La BNA avait été choisie de manière bien particulière, notre réflexion était la suivante : puisque en mode émission, un point chaud ne pouvait être créé au centre du gap que pour une polarisation parallèle aux deux parties métalliques de l'antenne et non pour une polarisation perpendiculaire, il était possible d'imaginer que celle-ci joue le rôle de nano-polariseur une fois utilisée en mode collection. Pour démontrer ce phénomène nous avons mené deux séries de simulations. La première considère des dipôles électriques et magnétiques et la seconde prend en compte des faisceaux gaussiens pour l'excitation de la BNA.

Étudions d'abord le cas des dipôles. L'avantage d'utiliser de telles sources est la possibilité d'exciter localement une structure selon différentes polarisations définies par l'orientation du dipôle et mettre en avant le champ électrique ou le champ magnétique. Nous avons excité notre sonde par six différents dipôles, trois électriques orientés selon les trois principales directions, (Ox) (comme vu dans le paragraphe précédent), (Oy) et (Oz), et trois magnétiques orientés de la même façon (figure 2.9). Les réponses spectrales de la pointe BNA pour ces excitations sont montrées sur la figure 2.11. Les spectres sont calculés comme il est décrit précédemment, pour des dipôles placés au centre du gap, à 10 nm de l'ouverture. Comme nous pouvons le constater, nous obtenons une résonance pronon-

cée pour une seule orientation des dipôles électriques, celle qui est parallèle aux ailes du papillon. Les faibles résonances obtenues pour le dipôle électrique orienté selon (Oy) et magnétique orienté selon (Oz), après investigation se sont avérées être dues à la composante du champ électrique polarisée selon (Ox) rayonnée par ces nano-sources. Le rebond apparaissant autour de 1100 nm est attribué à l'apparition de la première harmonique du mode fondamental. Ces résultats nous démontrent que notre sonde est principalement sensible à une seule composante du champ électromagnétique de la lumière, en l'occurrence à celle parallèle aux ailes de la nano-antenne.

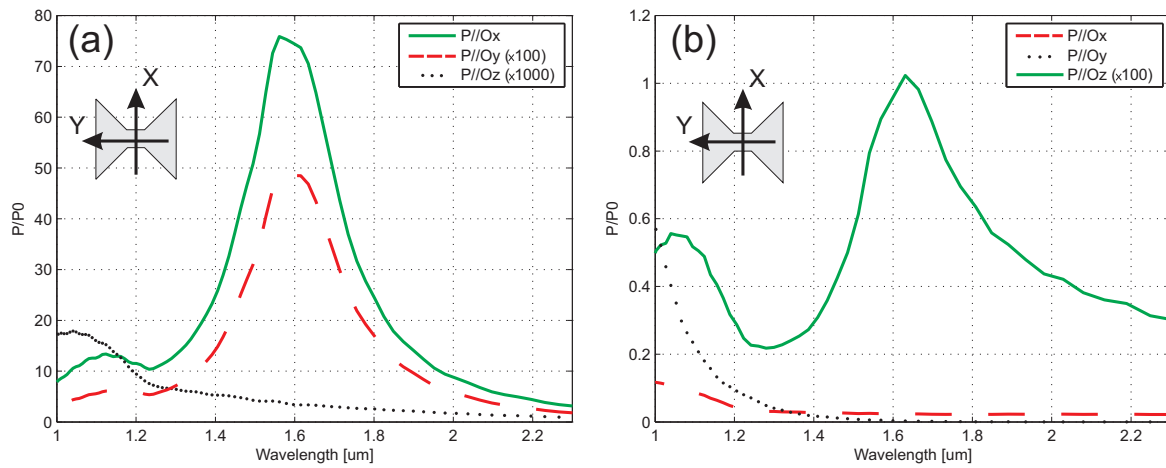


FIGURE 2.11 – Réponses spectrales en fin de pointe BNA pour a) une excitation par des dipôles électriques orientés selon les 3 axes principaux, b) des dipôles magnétiques également orientés selon ces axes X, Y, Z. A noter que la valeur en ordonnée est normalisée par la puissance totale émise par les dipôles considérés dans le vide.

Plusieurs conclusions peuvent être faites à partir de cette étude : d'une part il est clair que d'un point de vue théorique, cette sonde est majoritairement sensible à une seule composante du champ électrique optique : celle du champ électrique parallèle aux ailes métalliques de la BNA. D'autre part lorsque l'on se penche sur le taux de polarisation de notre nano-sonde (rapport des puissances collectées pour une orientation du dipôle selon (Ox) sur celle selon (Oy) à  $\lambda=1.55\mu\text{m}$ ) nous trouvons une valeur de 1 :170, nous avons donc bien une structure polarisante à la longueur d'onde de  $1.55\mu\text{m}$ , ce qui est conforme à notre cahier des charges.

Étudions maintenant le cas d'une excitation par un faisceau gaussien. Pour cette étude, du fait du caractère propagatif du faisceau gaussien, il n'est pas possible de vérifier la sensibilité de l'antenne à toutes les composantes d'une onde électromagnétique, il est en revanche possible de calculer le taux de polarisation de la pointe. Pour cela, deux simulations ont été effectuées (figure 2.12) à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$  par un faisceau gaussien de waist de  $3.2 \mu\text{m}$ . Une pour une excitation polarisée parallèlement à la BNA (selon (Ox)), l'autre perpendiculairement (selon (Oz)). Le taux de polarisation étant calculé par le rapport, pour les deux polarisation, du flux du vecteur de poynting à travers la surface  $\Pi$ , le taux obtenu chute alors à 1 :37.

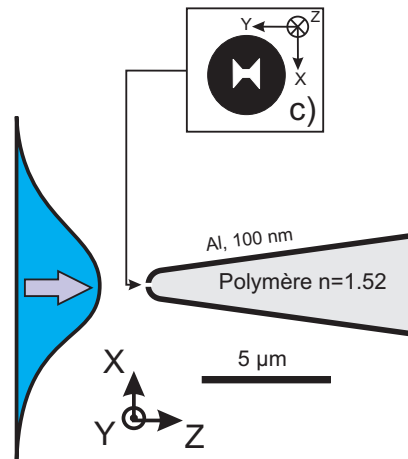


FIGURE 2.12 – Schéma de la pointe à ouverture papillon excitée par un faisceau gaussien.

Il existe une grande différence entre les taux de polarisation pour une excitation dipolaire et pour une excitation gaussienne. Cette différence peut s'expliquer par le fait que le dipôle n'affecte qu'une partie de la nano-ouverture, en l'occurrence le gap qui en est la partie fondamentale, alors que le faisceau gaussien lui, affectera toute la surface de la nano-antenne. La transmission à travers l'ouverture peut ainsi être meilleure pour un faisceau gaussien polarisé perpendiculairement aux ailes du papillon que pour un dipôle présentant la même direction de polarisation. Cela peut expliquer la chute du taux



de polarisation de la BNA avec une excitation de la structure par le faisceau large. Une autre information que nous apporte cette étude est la dépendance à l'angle d'émission des sources sur le taux de polarisation. En effet, un dipôle émet son rayonnement sur un grand nombre de fréquences spatiales, pourtant le taux de polarisation par cette excitation est meilleur, nous pouvons donc penser que l'angle d'émission de la source affectera assez peu les propriétés de polarisation de la sonde.

Enfin, de manière à évaluer la résolution de notre sonde, nous avons simulé la réponse impulsionnelle de la BNA sur pointe. Pour cette étude théorique, nous avons, une fois de plus, utilisé notre pointe de  $30\text{ }\mu\text{m}$  avec la BNA à son extrémité ( $D=315\text{ nm}$ ,  $G=45\text{ nm}$ ). Nous l'avons fait balayer par pas de  $5\text{ nm}$  un dipôle (émettant à  $1.55\text{ }\mu\text{m}$ ) déposé sur un substrat de verre et orienté parallèlement aux ailes du papillon (selon  $(Ox)$ ) (figure 2.13). Pour chaque position de la pointe, le flux du vecteur de poynting est calculé en fin de pointe à travers la surface  $\Pi$ . Les résultats de ces balayages sont donnés sur la figure 2.14, qui représente 2 profils de la réponse impulsionnelle selon les directions  $(Ox)$  et  $(Oy)$ . Comme nous pouvons le voir, le scan dans la direction parallèle aux ailes du papillon (selon  $(Ox)$ ), donne une largeur à mi-hauteur égale à la dimension du gap, soit environ  $50\text{ nm}$  dans notre cas. Dans la direction perpendiculaire (selon  $(Oy)$ ), nous obtenons environ 1.5 fois la largeur du gap ( $80\text{ nm}$  ici). La résolution de cette pointe en champ proche est donc clairement définie par la dimension du gap. En d'autre terme, plus petit sera le gap, meilleur sera la résolution. Expérimentalement, la résolution dépendra donc fortement de notre capacité à graver la couche métallique le plus de résolution possible par FIB.

La partie théorique a montré que la BNA sur pointe remplit le cahier des charges fixé en début de thèse. Avant de présenter la fabrication et l'application de ces structures en SNOM, nous allons examiner d'autres résultats théoriques qui nous ont permis d'approfondir nos connaissances sur le fonctionnement et le comportement optique de la BNA en bout de pointe en champ proche.

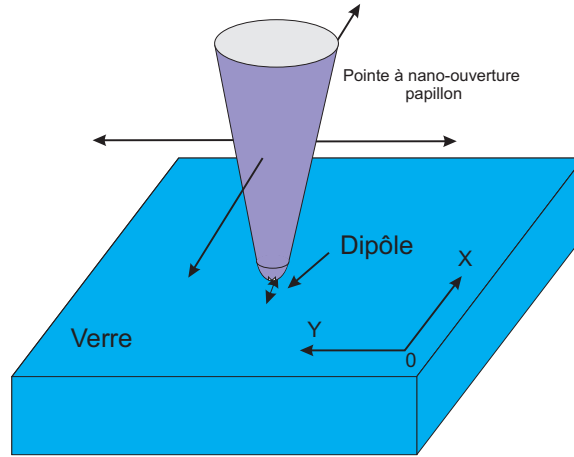


FIGURE 2.13 – Schéma de la simulation de la pointe balayant selon les axes (Ox) et (Oy) un dipôle déposé sur un substrat de verre et orienté selon (Ox).

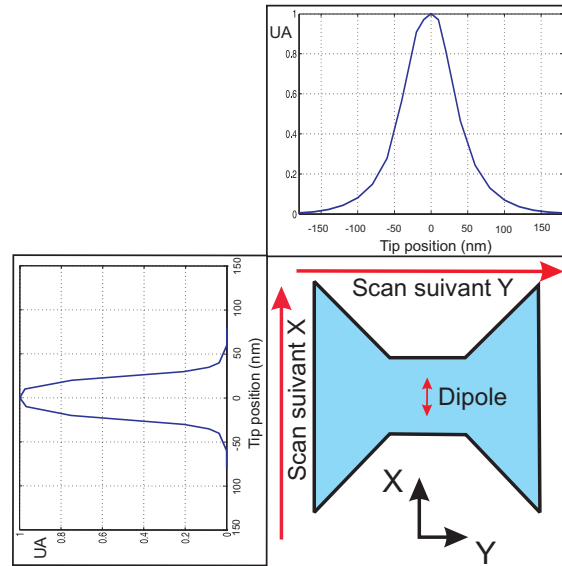


FIGURE 2.14 – Réponse impulsionnelle de la pointe BNA selon les axes propres (Ox) et (Oy).

### 2.2.3 Etude de l'effet de l'indice d'un échantillon sur la résonance de la BNA placée au contact de cet échantillon.

Nous avons vu précédemment que la BNA résonnait en mode collection à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$  pour des dimensions de  $D=315 \text{ nm}$ ,  $G=45 \text{ nm}$ , dans une couche d'aluminium d'épaisseur de  $100 \text{ nm}$  déposée sur une pointe en polymère d'indice  $1.52$ . Il est à

noter que ces dimensions avaient été calculées pour une pointe dans de l'air et non en contact champ proche avec un substrat. Nous nous sommes alors demandés si lorsque la pointe était proche d'un échantillon à caractériser et donc d'un indice différent de 1, il n'existait pas un indice effectif au voisinage de la nano-ouverture pouvant affecter ses propriétés spectrales de résonance. Pour répondre à cette question, nous avons simulé la courbe d'approche sur un simple substrat de verre par une pointe BNA ( $D=315$  nm,  $G=45$ nm) et étudié la position du pic de résonance de celle-ci en fonction de la distance "ouverture-surface" (figure 2.15). Pour cela un dipôle a été placé sur le substrat et la réponse spectrale de la pointe BNA excitée par ce dipôle a été simulée comme une fonction de la hauteur de la BNA par rapport au substrat.

Nous observons un déplacement du pic de résonance vers le rouge lorsque l'ouverture se rapproche du substrat. Le décalage en longueur d'onde apparait pour une distance légèrement supérieure à 80 nm et l'amplitude de ce shift au contact est de 200 nm. De plus ce décalage n'est pas linéaire, il répond à une loi exponentielle typique d'une interaction en champ proche. Nous avons déduit qu'à chaque échantillon devrait lui correspondre une nano-ouverture avec des dimensions qui lui sont propres. En revanche, nous avons montré que la présence d'un échantillon au contact de la nano-ouverture ne change pas les caractéristiques de résolution de la sonde (étude non présentée ici).

#### 2.2.4 Réponse spectrale en fonction de l'indice à l'intérieur de la cavité

Nous nous sommes également intéressés à l'influence de l'indice à l'intérieur même de la nano-ouverture sur sa réponse spectrale. Pour cela, une série de simulations a été effectuée, le schéma de celles-ci est représenté figure 2.16. Elles consistaient à plonger une pointe BNA ( $D=315$  nm,  $G=45$ nm) dans un substrat homogène d'indice variable. Comme précédemment la source se trouve être un dipôle orienté selon les ailes métalliques du papillon (selon (Ox)) et la réponse spectrale était calculée à l'intérieur de la pointe, comme il a

---

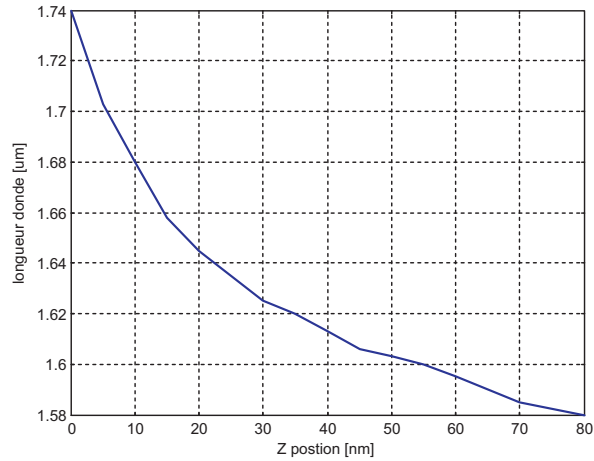


FIGURE 2.15 – Courbe d'approche de la sonde BNA sur un milieu semi-infini d'indice  $n=1.5$  : longueur d'onde de résonance de la BNA en mode collection, en fonction de la distance substrat/pointe.

été décrit précédemment. Les résultats sont montrés sur la figure 2.17.

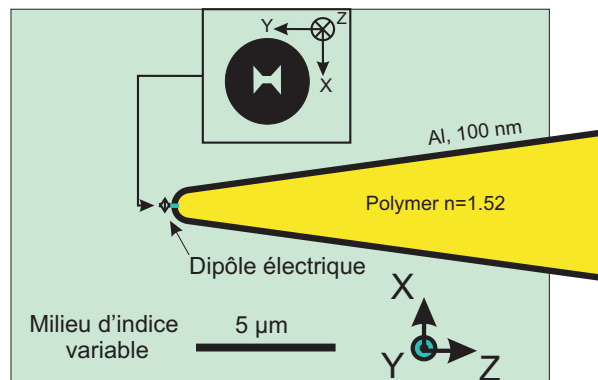


FIGURE 2.16 – Schéma des simulations pour l'étude de la réponse spectrale de la pointe BNA en fonction de l'indice dans lequel elle se trouve.

Les longueurs d'ondes de résonance de l'ouverture varient linéairement en fonction de l'indice à l'intérieur de celle-ci. Ce qui confirme le fait que la résonance à l'intérieur de l'ouverture est un mode guidé [9].

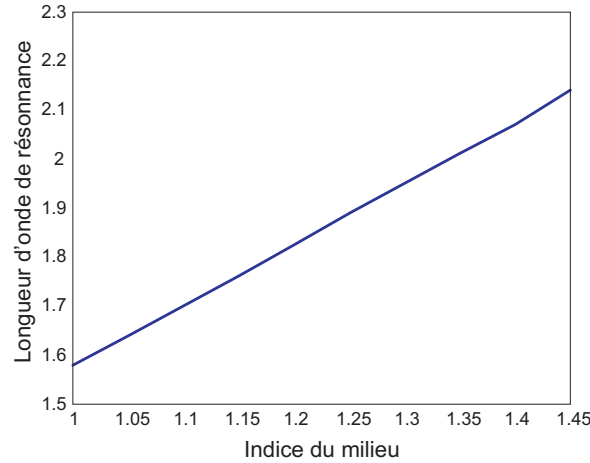


FIGURE 2.17 – Longueur d’onde de résonance de la pointe BNA en fonction du milieu dans lequel se trouve la pointe.

## 2.3 Réponse spectrale de la BNA en fonction de l’angle de ses triangles métalliques

Nous nous sommes ensuite intéressés aux répercussions sur la longueur d’onde de résonance, de l’angle que forment les ailes du papillon avec le gap (figure 2.18). Pour cela nous avons fait varier cet angle sur une BNA ( $D=315$  nm et  $G=45$ nm lorsque  $\theta=45$  degrés) usinée dans une couche de 250 nm d’épaisseur d’aluminium (de manière à augmenter le facteur de qualité de la résonance). L’excitation était faite par un dipôle électrique situé à 10 nm de l’ouverture, orienté parallèlement aux ailes du papillon (selon (Ox)). La réponse spectrale est calculée à travers une surface transverse à  $2\text{ }\mu\text{m}$  de la BNA du côté ne contenant pas le dipôle. Les résultats sont montrés figure 2.19.

Nous observons que la longueur d’onde de résonance de la BNA est quasi-invariante en fonction de l’angle  $\theta$ . C’est un résultat très important qui sera utile dans les fabrications des BNAs sur pointes ainsi que dans les applications futures de ces nano-ouvertures. Ce résultat démontre également que la surface de métal des ailes du papillon n’influe pas sur la résonance de la BNA (puisque’elle n’est pas constante en fonction de  $\theta$ ), pas plus que le volume de métal comme l’a montré Ibrahim et al [9]. Cette résonance du mode fondamental ne dépend donc que de la dimension du gap ( $G$ ) et de la longueur  $L_c$  (figure

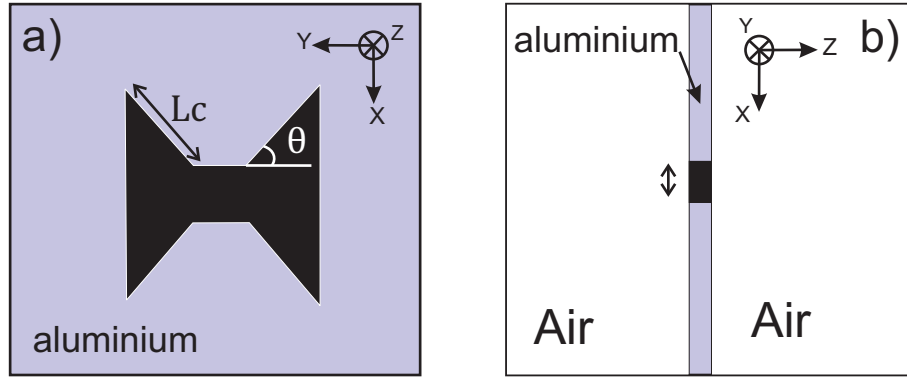


FIGURE 2.18 – Schéma du modèle de la BNA pour l'étude de sa réponse spectrale en fonction de l'angle  $\theta$ . a) coupe transverse et b) coupe longitudinale de l'ouverture.

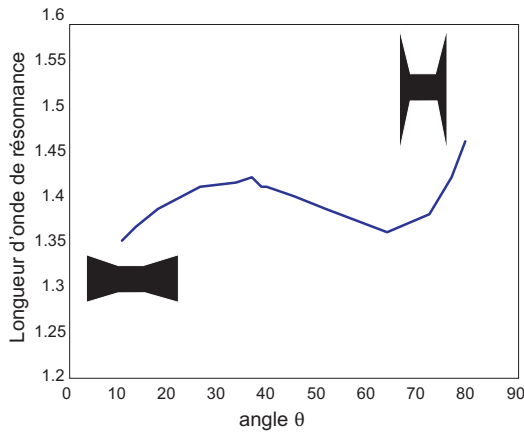


FIGURE 2.19 – Réponse spectrale de la BNA en fonction de l'angle  $\theta$ .

2.18) (ou D lorsque  $\theta = 45$  degrés).

### 2.3.1 Réponse spectrale en fonction des défauts de la BNA

Jusqu'à maintenant, nous avons considéré dans nos calculs une nanostructure idéale, c'est-à-dire sans aucun défaut, avec des angles parfaitement définis et des flancs droits. Malheureusement, dans la réalité, les fabrications de BNA ne sont pas parfaites : les angles ont toujours un certain arrondi, les flancs ne sont jamais parfaitement droits et le métal est plus ou moins rugueux (figure 2.20). Dans l'étude décrite ci-dessous, nous avons cherché à connaître l'influence de certains de ces défauts sur la résonance de la BNA, notamment l'inclinaison des flancs de la nano-ouverture ou seulement du gap, de l'arrondi du gap,

d'une gravure trop profonde ou provoquant un soulèvement de la couche métallique. Pour ces simulations, l'excitation était effectuée par un dipôle parallèle aux ailes du papillon, à 10 nm de celui-ci, l'ouverture étant placée à l'extrémité d'une pointe de 8  $\mu\text{m}$  de long et la réponse spectrale était calculée à la fin de la pointe (comme expliqué précédemment). A noter que pour cette étude le maillage fin de la simulation (celui de l'ouverture) était de 1 nm, de manière à avoir la meilleure définition possible des défauts. Les résultats de cette étude sont présentés sur la figure 2.21.

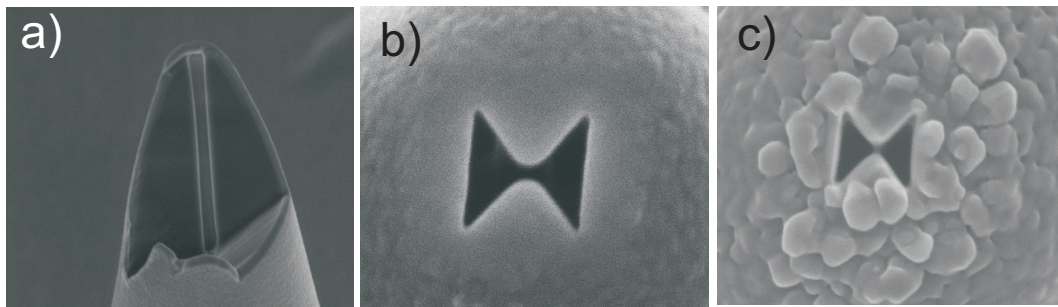


FIGURE 2.20 – Images MEB d'exemples de défauts pouvant exister lors de la fabrication de nano-structures.

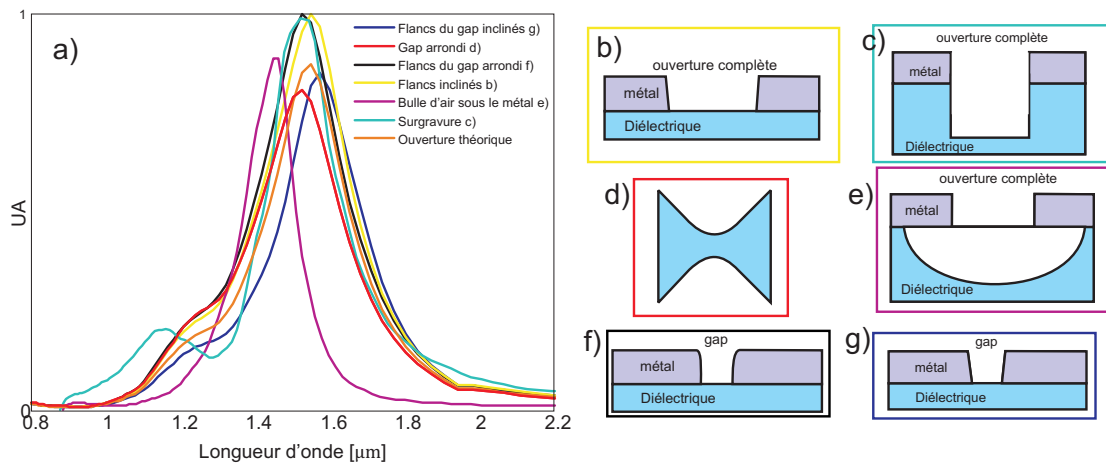


FIGURE 2.21 – Réponses spectrales de la BNA déposée sur un substrat d'indice 1.45, en fonction de certains défauts pouvant apparaître lors d'une fabrication.

Il apparait clairement que seul le fait de placer un interstice d'indice 1 entre le métal et le polymère de la pointe fait changer significativement la résonance de la nano-ouverture (décalage de 100 nm vers le rouge). Les autres changements n'affectent que très peu celle-

ci. Nous expliquons les différentes amplitudes par le fait que selon les défauts, l'antenne ne rayonnera pas son énergie de manière similaire, l'absorption par le métal de la pointe sera alors différent selon les cas, ce qui conduira à des différences dans les puissances collectées en bout de pointe.

## 2.4 Conclusions

Dans cette partie nous avons démontré de manière théorique que notre sonde SNOM BNA est résonnante dans le vide à la longueur d'onde de  $1.55 \mu\text{m}$  pour des dimensions  $D=315 \text{ nm}$  et  $G=45 \text{ nm}$  et que cette résonance est dépendante du milieu environnant la BNA. De même, Il a été démontré qu'elle n'est sensible qu'à une composante du champ électrique transverse de la lumière, celle parallèle aux ailes métallique du papillon, aussi bien pour des excitations dipolaires (1 :170) que par un faisceau gaussien (1 :37). La résolution de cette pointe est définie par les dimensions de son gap. Les résultats obtenus permettent d'affirmer que d'un point de vue théorique, cette sonde remplit bien le cahier des charges que nous nous sommes fixés, voyons à présent si cela est également le cas d'un point de vue expérimental.

---



## Chapitre 3

# Étude expérimentale d'une nano-ouverture à géométrie papillon en bout de pointe pour la microscopie champ proche optique

Dans ce chapitre, nous décrirons dans une première partie les procédés de fabrication de la pointe BNA, puis dans une deuxième partie les caractérisations de cette pointe en mode émission puis collection. Enfin, en troisième partie les applications de cette pointe sur différents échantillons : réseau diélectrique, cristaux photoniques, échantillons plasmoniques.

### 3.1 Fabrication

#### 3.1.1 Fabrication de la pointe métallisée

Commençons cette partie par un rapide descriptif de la fabrication de la pointe polymère à l'extrémité de laquelle est fabriquée notre BNA. Dans le cadre du projet ANR NANOEC dans lequel s'inscrit cette partie de ma thèse, cette fabrication est assurée par l'entreprise partenaire LOVALITE. Cette start-up est spécialisée dans la production de pointes en polymère intégrées sur fibre optique. La technique de fabrication de ces pointes est schématisée en partie sur la figure 3.1(a) [84]. Une goutte de solution polymérisable (triacylate de pentaérythritol (polymère) + éosine (photoamorceur)) est déposée à l'extrémité d'une fibre optique clivée (dans notre cas monomode à  $1.55\ \mu\text{m}$  (SMF-28e)). Puis, par injection d'un faisceau laser à la longueur d'onde d'absorption de l'émulsion photo-

---

sensible ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) à l'autre extrémité de la fibre optique, la partie de la solution qui est illuminée est polymérisée en forme de cône. Enfin, par immersion dans un bain d'alcool, la partie non polymérisée est alors enlevée, ce qui donne naissance à une pointe de longueur micrométrique greffée à la fibre optique.

Cette technique permet de créer une grande gamme de pointes, de longueurs et de formes variées (cf. <http://www.lovalite.com>). Le temps d'insolation de la goutte polymérisable permet par exemple d'agir sur la courbure de l'apex. Ceci est un point très important de cette partie expérimentale. Enfin, le fait d'utiliser directement le mode de fibre pour générer la pointe assure un très bon alignement de la structure par rapport au cœur de la fibre, une parfaite symétrie de révolution de la pointe, ainsi qu'une excellente efficacité de transfert d'énergie de la pointe à la fibre.

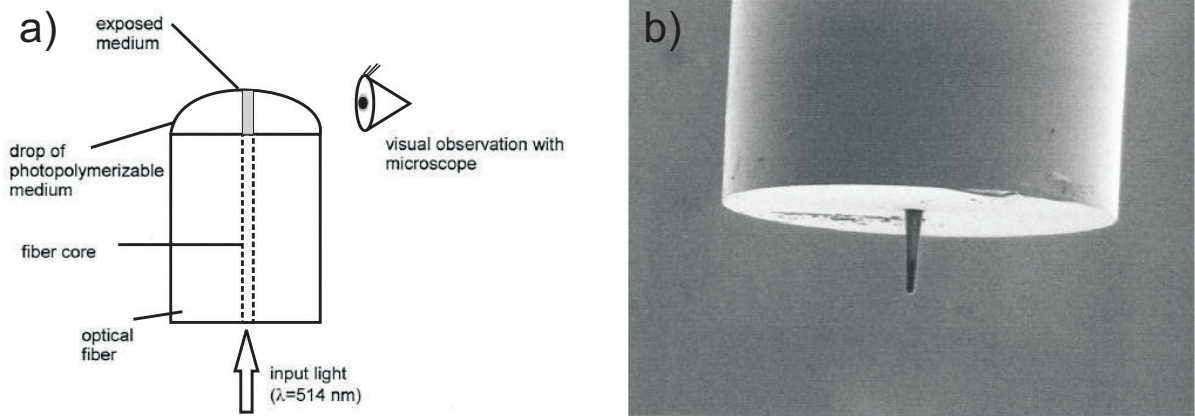


FIGURE 3.1 – a) Schéma de la phase d'insolation de la solution photosensible placée en bout de fibre optique clivée, b) Image MEB du résultat : pointe micrométrique en polymère intégrée sur fibre optique et présentant un rayon de courbure d'apex de  $1 \mu\text{m}$  et une longueur de  $30 \mu\text{m}$ .

Rappelons brièvement le cahier des charges relatif aux pointes supports des nano-antennes. Nous avons décidé au début de ce travail de développer des pointes de  $20\text{-}30 \mu\text{m}$  de long à l'extrémité d'une fibre monomode à  $1.55 \mu\text{m}$  (SMF-28e) présentant un rayon de courbure de  $500 \text{ nm}$ . La pointe doit également être métallisée avec une couche

d'aluminium de 100 nm d'épaisseur. La technique de fabrication des pointes développée par Lovalite a été adaptée par D. Nedeljkovic (ingénieur de la start-up) pour satisfaire ces exigences. Une image d'une pointe type développée pour les besoins de ce travail est représentée sur la figure 3.2.

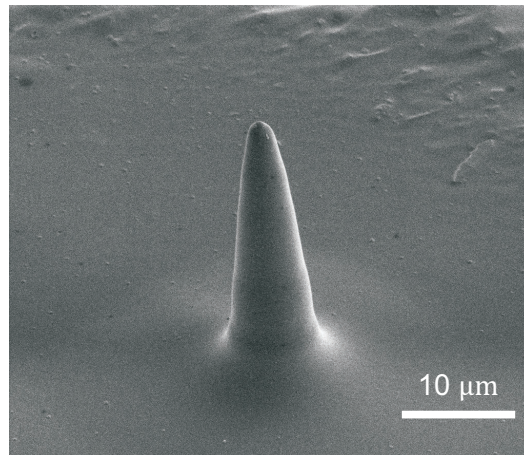


FIGURE 3.2 – Image MEB d'une pointe utilisée dans le cadre du projet ANR NANOEC, son rayon de courbure était de 500 nm et sa longueur de 30 μm.

La métallisation a eu lieu à la centrale de technologie MIMENTO de Besançon (en salle blanche). Les dépôts ont été effectués par une technique d'évaporation, effectuée sur une machine à évaporation EVA 450 de chez Alliance Concept. La première étape de cette phase de métallisation a consisté à déposer une couche d'accroche de titane d'environ 5 nm d'épaisseur afin d'accroître la résistance de la couche d'aluminium aux contraintes thermiques pouvant exister lors d'une illumination de la pointe (formation de points chauds). Notons que j'ai vérifié théoriquement que la couche de titane ne change en rien les propriétés optiques de la nano-antenne, c'est-à-dire qu'il n'y a pas lieu de re-designer la nano-ouverture en prenant en compte cette couche d'accroche. En outre, pour éviter une déposition trop rugueuse d'aluminium, la vitesse de dépôt devait être assez rapide, dans notre cas elle était de 5 nm par seconde (la rugosité est inversement proportionnelle à la vitesse de dépôt [85]).

## 3.2 Usinage de la BNA

Comme nous l'avons évoqué précédemment, l'usinage des nano-ouvertures a été effectué par faisceau d'ions focalisés (ou FIB). Nous avons utilisé le FIB disponible à la centrale technologique de l'IEMN (Institut d'électronique, de microélectronique, et de nanotechnologie) à Lille (modèle FEI STRATA DB 235). Les réalisations ont été assurées par D. Troadec (ingénieur de la centrale). Cette technique a été préférée à la lithographie e-beam, car cette dernière s'avère être difficilement adaptable à des réalisations en bout de pointe. En effet, la nécessité du dépôt d'une couche fine homogène de résine électrosensible sur le sommet de la pointe et d'un repérage de l'apex par microscopie électronique avant la phase d'usinage (qui risque de modifier les propriétés de la résine) compliquent la mise en œuvre de cette technique dans notre cas.

Nous avons fabriqué des BNAs de dimensions proches de celles considérées dans le chapitre 2 ( $G=50$  nm,  $D=310$  nm,  $Th=100$  nm). Ces structures seront donc sensées être résonantes à une longueur d'onde de 1.55 microns. Une étape préliminaire d'imagerie de l'apex par faisceau d'ions focalisé est nécessaire afin de réaliser la mise au point du faisceau d'ions sur la zone à usiner (afin d'obtenir la résolution la plus fine dans la phase d'usinage des BNAs). Le faisceau d'ions de faible puissance nécessaire à l'imagerie peut détériorer la surface de la couche métallique si l'on souhaite obtenir une image contrastée de la pointe. Il y a donc un compromis à trouver entre la visibilité de l'image nécessaire à la mise au point et la détérioration de la couche métallique qui en résulte. Plus la surface métallique sur l'apex est rugueuse, plus ce réglage est aisé et donc plus la précision d'usinage est importante. Les couches métalliques peu rugueuses obtenues par Loralite ont rendu critique le réglage de la mise au point du faisceau d'ion sur l'apex. Enfin, l'aluminium étant beaucoup plus dur que le polymère, il faut ajuster au mieux les paramètres d'usinage (vitesse de gravure, tension d'accélération des ions, etc) afin de réaliser la gravure ionique sur la totalité de la couche métallique. Si la dose ionique bombardée sur l'apex est trop importante, nous risquons de percer la totalité de l'épaisseur de la

---

couche d'aluminium et plusieurs microns de polymère à l'intérieur de la pointe (figure 3.3 a)). Inversement, si la dose est trop faible, la couche d'aluminium ne sera pas gravée sur toute sa hauteur et la géométrie spécifique de la nano-antenne ne sera pas dégagée à l'extrémité de la pointe (figure 3.3(b)). La figure 3.4 montre l'exemple d'une réalisation de BNA en bout de pointe avec les paramètres d'usinage optimisés (non communiqués ici).

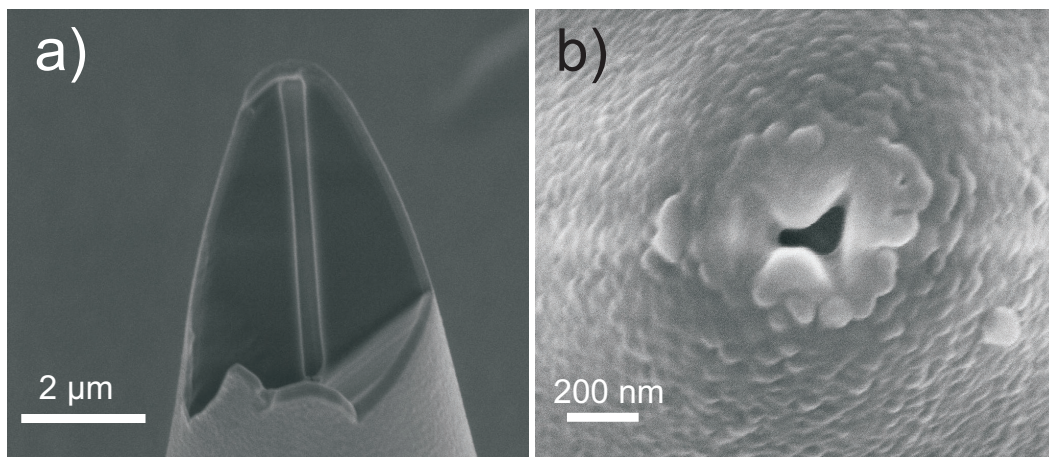


FIGURE 3.3 – Image MEB a) d'une pointe dont l'ouverture a été gravée trop profondément (vue de coté de la pointe coupée au FIB dans le sens de la hauteur) et b) d'une pointe dont l'ouverture n'a pas été assez gravée (vue de face).

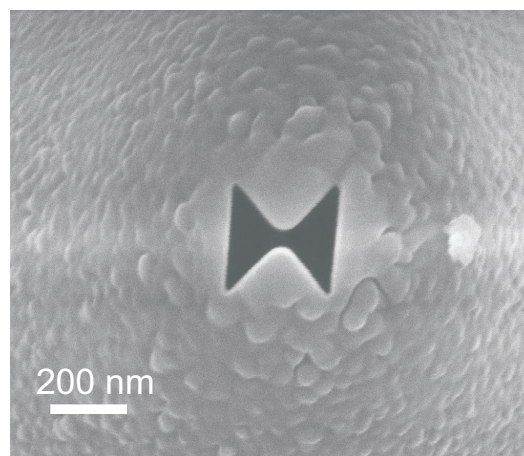


FIGURE 3.4 – Image MEB d'un BNA sur pointe SNOM fibrée avec les paramètres d'usinage correctement ajustés.

### 3.3 Caractérisation

Cette étape vise à vérifier qualitativement si les nano-antennes fibrées développées ont un comportement optique conforme aux prédictions théoriques et à quantifier leurs performances, notamment leurs propriétés de polarisation (leur sensibilité à la polarisation du champ électrique optique). Cette étude sera menée avec des sondes fibrées à nano-antennes fonctionnant en mode émission et en mode collection. Les mesures seront menées en champ lointain puis en champ proche. Une étude en champ lointain des sondes est possible du fait de la nature dipolaire des nano-ouvertures papillons : elle permet de détecter en champ lointain les résonances localisées au niveau de l'entrefer.

#### 3.3.1 Caractérisation en mode émission

Dans cette étude nous cherchons à démontrer les propriétés polarisantes de la pointe BNA en mode émission, c'est-à-dire obtenir des images en champ lointain de la BNA lorsque celle-ci est excitée par des modes de fibre polarisés suivant les axes parallèles et perpendiculaires à la direction des ailes métalliques de la BNA.

La figure 3.5 reporte le schéma du dispositif expérimental d'imagerie. Un faisceau laser ( $\lambda=1.55 \mu\text{m}$ ,  $100 \mu\text{W}$ ) est injecté dans la fibre optique à l'extrémité de laquelle se trouve la BNA (laser : Hewlett Packard, modèle 8164A). L'apex est imagé en champ lointain à travers un objectif  $\times 100$  d'ouverture numérique de 0.9 monté sur un microscope droit (Reichert Polyvar Met) et une caméra infrarouge (InGaAs, Hamamatsu C2741-03).

Cette étude est qualitative puisqu'aucun relevé de puissance n'a été effectué. La figure 3.6 reporte les images prises par la caméra infrarouge pour les deux polarisations incidentes parallèle et perpendiculaire à l'axe des ailes métalliques de la BNA. Il apparaît clairement qu'un des deux confinements optiques créés au sein de la BNA est beaucoup plus intense que l'autre, ce qui indique une forte dépendance de la BNA à la polarisation

---

du champ excitateur. Nous pouvons dès lors affirmer que l'effet d'antenne propre à la BNA est la cause de cette dépendance à la polarisation. A noter que pour pouvoir observer les deux spots avec les mêmes réglages de gain et de sensibilité de la caméra, il a fallu saturer l'image obtenue avec la polarisation incidente parallèle aux ailes métalliques de la BNA. Ces résultats confirment les propriétés polarisantes de la BNA sur pointe SNOM fibrée.

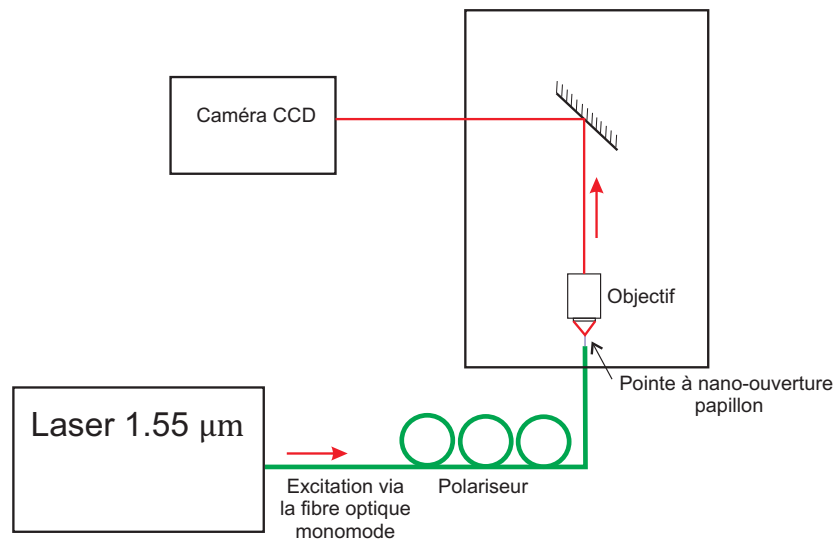


FIGURE 3.5 – Schéma de l'expérience menée en mode émission.

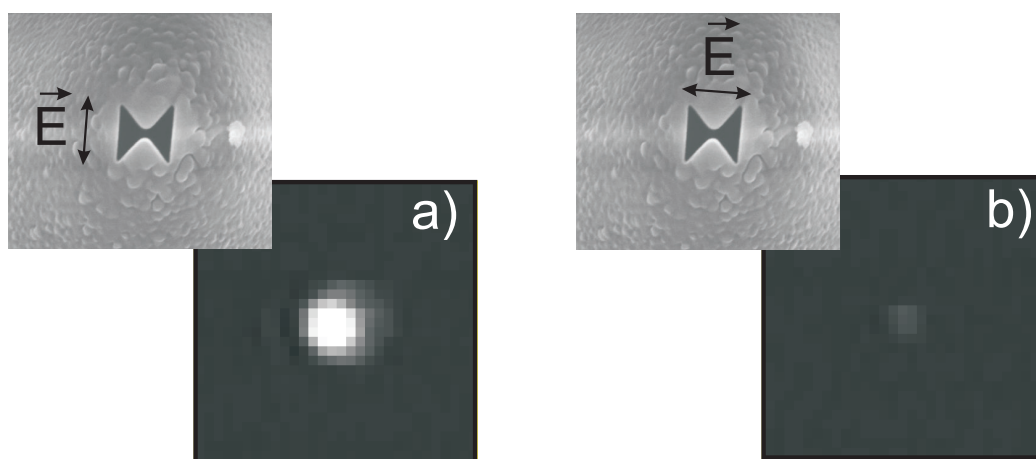


FIGURE 3.6 – Images en champ lointain de la BNA sur pointe à travers un objectif de forte ouverture numérique (0.9) couplé à une caméra infrarouge. a) Le mode de fibre incident à la BNA est polarisé a) parallèlement et b) perpendiculairement aux ailes métalliques de la BNA .

### 3.3.2 Caractérisation en mode collection

Dans cette étude nous cherchons à démontrer les propriétés polarisantes de la pointe BNA cette fois en mode collection. Pour ce faire, nous proposons de tracer le diagramme de polarisation de cette pointe en l'excitant en champ lointain par un faisceau laser polarisé linéairement focalisé sur la structure, et en mesurant la puissance transmise par la pointe dans la fibre optique en fonction de la direction de la polarisation incidente (linéaire).

Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure 3.7. Nous avons injecté un faisceau laser (laser Hewlett Packard 8164A,  $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ ) polarisé linéairement de 5 mW de puissance focalisé directement sur la pointe avec un objectif  $\times 20$ . Nous avons mesuré la puissance collectée par la BNA dans la fibre optique par un détecteur InGaAs connecté à la sortie de la fibre et associé à une détection synchrone. Ensuite, grâce à une lame demi-onde nous avons fait tourner la polarisation incidente et nous avons relevé l'amplitude du signal détecté en fonction de la direction de polarisation incidente, ce qui nous a permis de tracer le diagramme de polarisation donné sur la figure 3.8. Le diagramme de polarisation obtenu reproduit de manière fidèle le diagramme de polarisation d'un polariseur idéal (décrit par une fonction sinusoidale au carré, courbe en pointillés). Le taux de polarisation de la BNA est mesuré à 1 :32. Nous avons obtenu dans le chapitre 2 un taux de polarisation théorique d'une BNA idéale de 1 :37. Les performances des BNAs expérimentales sont très proches des prédictions théoriques, ce qui témoigne de la qualité de réalisation des pointes SNOM BNA.

## 3.4 Application : sonde locale pour la microscopie en champ proche : nano-analyseur de champ électrique optique

Dans la suite de ce chapitre, nous allons démontrer que la BNA sur pointe fibrée peut jouer le rôle de sonde locale SNOM innovante permettant de collecter sélectivement une



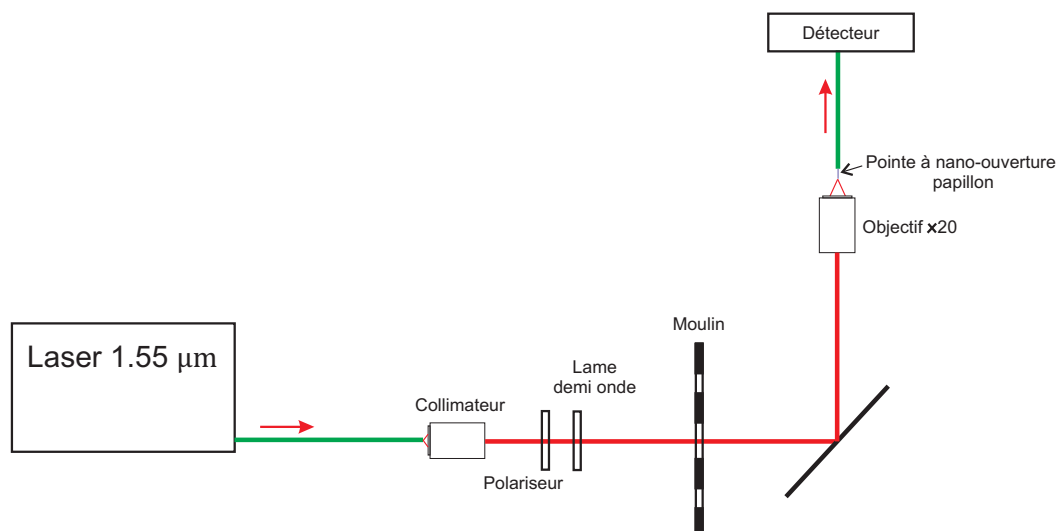


FIGURE 3.7 – Schéma de l'expérience menée en mode collection et en champ lointain.

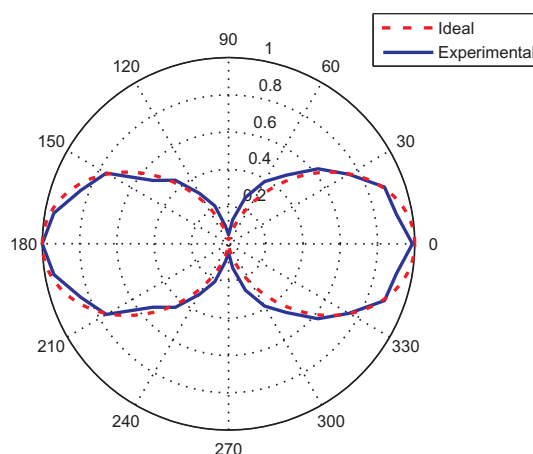


FIGURE 3.8 – Diagramme de polarisation obtenu lors de la rotation de la polarisation incidente sur la pointe à ouverture papillon en champ lointain et en mode de collection.

composante unique du champ électrique optique. Pour cela, différents types d'objets ont été utilisés. Tout d'abord, des échantillons diélectriques ont été inspectés tels qu'un réseau diélectrique et des microlasers à cristaux photoniques. Deux types de structures à cristaux photoniques ont été étudiés : des cristaux photoniques à mode de Bloch lents et à mode de cavité. Enfin, notre dernier échantillon sera une structure métallique plasmonique aléatoire : une couche d'or au seuil de percolation.

### 3.4.1 Principe de fonctionnement d'un microscope optique en champ proche en mode collection par la pointe

La microscopie optique en champ proche où SNOM (Scanning Near-Field Optical Microscopy) permet de s'affranchir des limites de résolution de la microscopie classique [25].

La microscopie SNOM a été proposée historiquement pour la première fois par E. Synge en 1928 [86]. Il décrivait l'expérience qui permettrait selon-lui d'obtenir une image d'un échantillon biologique avec une résolution spatiale de 10 nm. Il fallu attendre la fin des années 80 pour que les premiers microscopes optiques en champ proche fassent leur apparition [71, 87, 88]. Différentes configurations furent alors développées, telles que le SNOM à pointe émettrice [88], le STOM (Scanning Tunneling Optical Microscope) [89] ou PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope) [90] qui est un microscope en mode collection par la pointe (l'équivalent optique du STM (Scanning Tunneling Microscope) [91]), et l'ASNOM (Apertureless SNOM)[92] dont le principe est basé sur la détection de la perturbation par la sonde locale du champ proche optique d'un échantillon.

La configuration de microscope SNOM dans laquelle sera étudiée la BNA est à mode collection par la pointe. La microscopie SNOM à mode de collection par la pointe [93] (la base des STOM/PSTM) utilise des sondes locales qui sont capables de venir détecter la lumière au voisinage proche de la surface d'un échantillon, constituée pour une bonne partie d'ondes évanescentes (non propagatives). Les sondes convertissent le champ évanescent en ondes propagatives détectables en champ lointain. Cette microscopie permet alors d'obtenir des résolutions très supérieures à la demi-longueur d'onde de la lumière (critère de Rayleigh).

La pointe SNOM fibrée BNA est collée sur un diapason d'horloger, lui-même placé sur une tête SNOM commercialisée par NTMDT (figure 3.9). La tête SNOM permet une approche de la pointe sur la surface, puis de garder une distance nanométrique constante

---

entre celles-ci. Cette tête fonctionne sur le principe du contrôle de distance par shear force (force de cisaillement). Ce principe consiste à faire vibrer le diapason d'horloger sur lequel est collée la pointe à sa fréquence de résonance de 33 kHz dans notre cas. A l'approche de la surface, des forces de cisaillement de natures diverses (forces de Van der Waals, forces acoustiques, etc) vont apparaître (au plus à 10 nm de la surface) et engendrer un déplacement du pic de résonance de vibration du diapason. La chute de l'amplitude de vibration du diapason qui en résulte est détectée par l'électronique de pilotage de la tête SNOM et est considérée comme étant le signal de contrôle du positionnement de la pointe près de la surface. Ce signal est comparé à une tension constante, appelée consigne, définie par l'expérimentateur. Cette comparaison permet, grâce à une boucle d'asservissement électronique, de maintenir la pointe à une distance constante de la surface. Le signal de contre-réaction du système électronique est transmise au tube piézo-électrique sur lequel est fixé le diapason. Notons que l'approche de la pointe SNOM de la surface se fait grâce à un moteur à courant continu de précision.

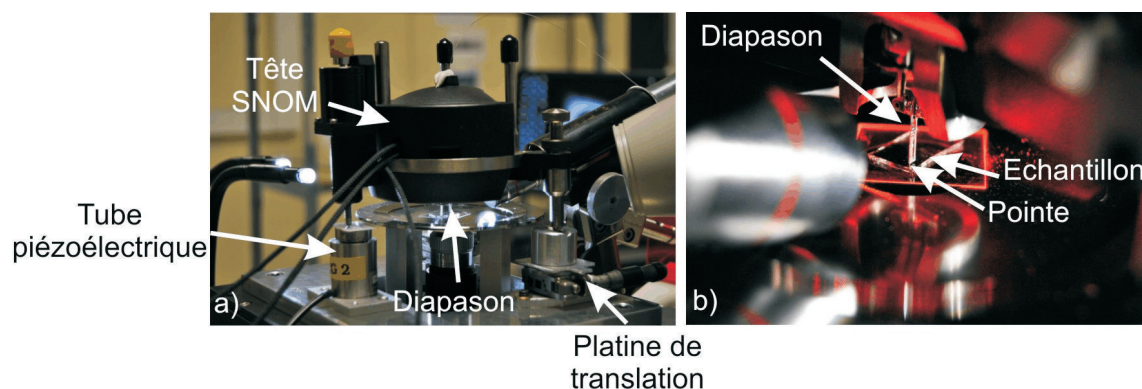


FIGURE 3.9 – Photographies de la tête SNOM en condition de fonctionnement.

Le schéma du dispositif expérimental utilisé pour l'ensemble des caractérisations est représenté sur la figure 3.10.

La tête SNOM utilisée dans nos expériences repose sur trois pieds. Chaque pied repose sur des supports individuels : deux d'entre eux possèdent des vis micrométriques

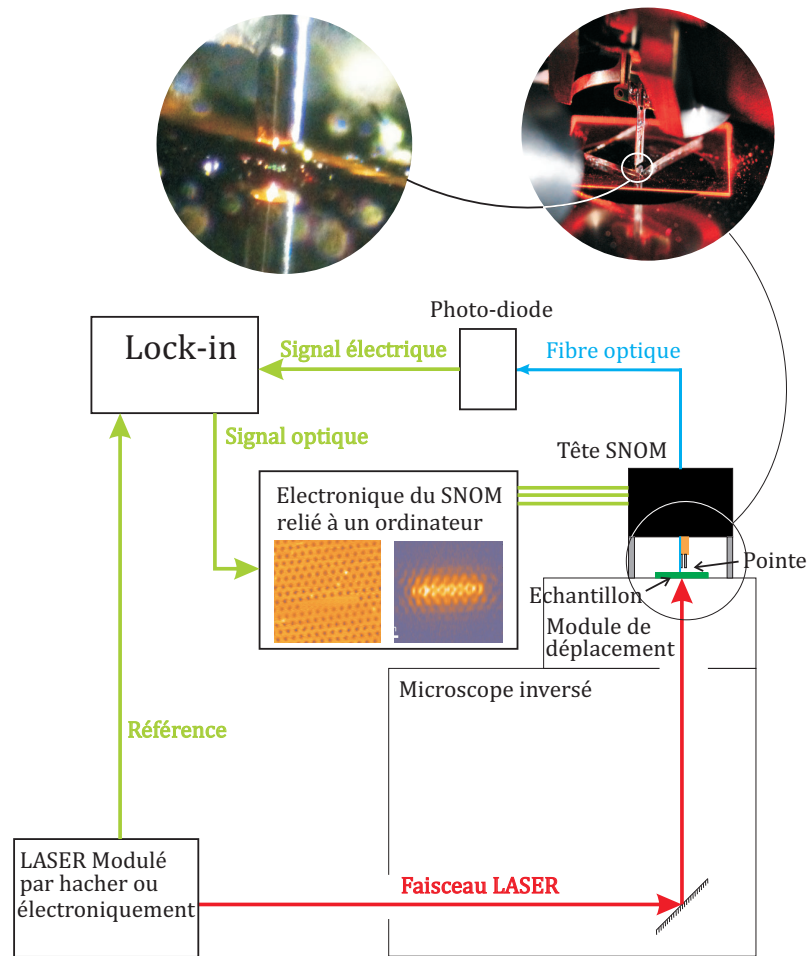


FIGURE 3.10 – Schéma du montage utilisé pour caractériser nos différents échantillons.

de translation pour pouvoir déplacer la tête SNOM dans le plan parallèle au dessus de l'échantillon (figure 3.9 a) ; le troisième support est un tube piézoélectrique permettant un réglage supplémentaire de la hauteur de la tête SNOM (figure 3.9 a). Le tout est placé sur la partie supérieure d'un microscope inversé Nikon (Eclipse TE2000-U). Cette tête SNOM est contrôlée par une électronique, elle-même pilotée par ordinateur. L'ordinateur collecte également les informations détectées par la pointe. L'échantillon est placé sur une platine piézoélectrique (modèle Nano-LP, Mad City Lab), elle-même placée sur le microscope inversé. Elle permet de déplacer l'échantillon en X, Y et Z indépendamment de la pointe et du faisceau d'illumination. L'excitation de l'échantillon est réalisée par un laser à travers une des entrées du microscope inversé. Selon les applications, le faisceau laser est modulé soit par un moulin (SCITES instrument, optical chopper), soit électroniquement (système

Hewlett Packard 3245A couplé à un dispositif Hewlett Packard 8082A pulse generator). Les informations optiques collectées par la pointe sont guidées par la fibre optique jusqu'à une photodiode InGaAs amplifiée qui convertit le signal optique en signal électrique jusqu'à un lock-in (Stanford research systems). Ce dernier permet une détection synchrone entre ce signal et le signal de référence venant de la modulation du laser incident. Le lock-in délivre alors à la carte d'acquisition de l'ordinateur un signal optique filtré. Ce montage nous permet également d'obtenir des informations topographiques par le biais de la mesure du signal électrique de contre-réaction appliqué au tube piézoélectrique de la tête SNOM durant le balayage.

### 3.4.2 Réseaux diélectriques

Nous avons dans un premier temps cartographié le champ diffracté par deux réseaux diélectriques. Le premier réseau était éclairé par un laser à  $1.55 \mu\text{m}$  et polarisé TM (le champ électrique était perpendiculaire aux lignes du réseau). Ce réseau possédait une période de  $1.9 \mu\text{m}$ , ce qui lui conférait trois ordres de diffraction homogènes à la longueur d'onde considérée. La figure 3.11 montre l'image par la BNA fibrée de l'interférogramme de ces trois ordres homogènes selon une ligne de balayage (perpendiculaire aux lignes du réseau). L'acquisition a été réalisée en champ lointain pour deux orientations perpendiculaires de la BNA par rapport au champ électrique incident. Il a été observé une atténuation du signal collecté d'un facteur 30 entre les deux orientations. Ce résultat nous apporte deux informations, la première sur la capacité de la BNA à cartographier une distribution de champ complexe et la deuxième sur ses capacités d'analyse vectorielle dans son rôle de sonde locale optique. Le taux de polarisation déduit de ces résultats est de 1 :30. Le processus de collection locale est ici dicté majoritairement par les propriétés d'antenne propres à la BNA.

La première tentative de microscopie en champ proche par BNA fibrée a été réalisée

---

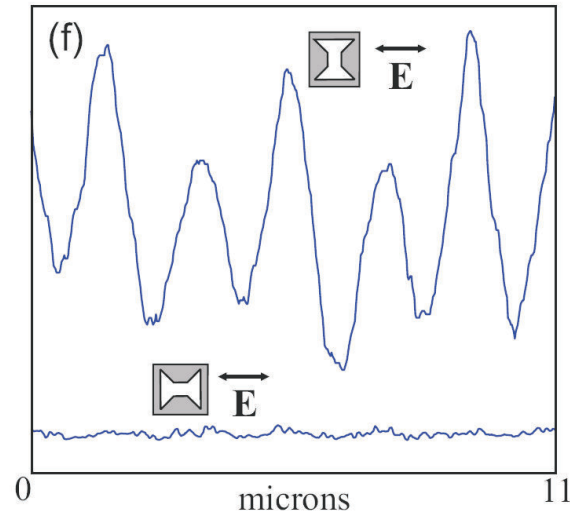


FIGURE 3.11 – Une ligne de balayage en champ lointain du réseau de pas  $1.9 \mu\text{m}$  en fonction de l'orientation de la BNA par rapport au champ électrique.

sur un réseau diélectrique 1D en PMMA (polyméthacrylate de méthyle, indice optique de 1.49) de période  $0.7 \mu\text{m}$ , de  $250 \text{ nm}$  de profondeur et de  $200 \text{ nm}$  de largeur de trait. Il était illuminé en incidence normale par un faisceau laser de longueur d'onde  $1.55 \mu\text{m}$  polarisé TM (le champ électrique était perpendiculaire aux traits du réseau)(figure 3.12). A cette longueur d'onde, les ordres de diffraction de ce réseau sont tous évanescents sauf l'ordre zéro. Ainsi, les variations d'intensité lumineuse ont lieu uniquement en champ proche. Les résultats obtenus sont montrés sur la figure 3.13 pour une orientation des ailes du papillon parallèle à la direction de polarisation de champ électrique incident. Les figures 3.13 a) et b) montrent respectivement les images topographiques et optiques de ce réseau obtenues par la BNA. La figure 3.13c) reporte les profils topographiques et optiques réalisés selon une même ligne perpendiculaire aux traits du réseau. Le signal optique est comparé à la simulation par FDTD du profil d'intensité de la composante du champ électrique parallèle à l'axe d'analyse vectorielle de la BNA. Le bon accord entre les courbes théoriques et l'expérimentale tend à prouver que la BNA fibrée est capable de restituer une image fidèle des variations sub-longueurs d'onde portées par la composante du champ électrique parallèle à son axe d'analyse vectorielle. La dissymétrie observée sur l'image expérimentale peut s'expliquer par un léger décentrage de la BNA par rapport à

la pointe ou un couplage entre la pointe et l'échantillon. Les variations de topographie mesurées n'excédant pas 10 nm, sur un réseau profond de 250 nm, nous pouvons considérer que l'image est obtenue à hauteur quasi constante (d'où une comparaison possible avec les courbes théoriques). A noter que les brusques variations dans le signal optique collecté font environ 130 nm de large soit  $\lambda/12$ . Elles sont 2.4 fois plus petites que la largeur totale de l'antenne, ce qui confirme le fait que le processus de collection passe principalement par l'excitation du gap (effet d'antenne de la BNA) plutôt que par une transmission optique à travers l'ouverture entière.

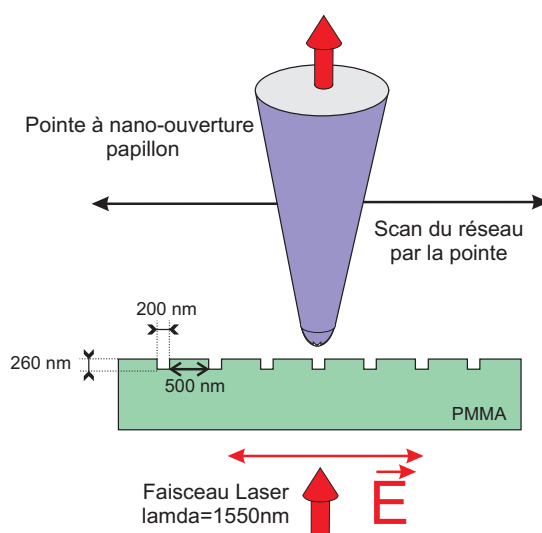


FIGURE 3.12 – Schéma de l'acquisition SNOM du réseau par une sonde à ouverture papillon.

### 3.4.3 Cristal photonique à mode de Bloch

Tout d'abord, commençons par une rapide description des cristaux photoniques [28]. Les cristaux photoniques sont à l'optique ce que sont les cristaux à la physique du solide. Pour un cristal photonique, la périodicité des atomes est remplacée par la périodicité des indices optiques des milieux constituant le cristal photonique. Les photons se propageant dans ce milieu sont alors soumis à des perturbations périodiques et une forte dispersion, ce qui peut provoquer des effets de bandes interdites.

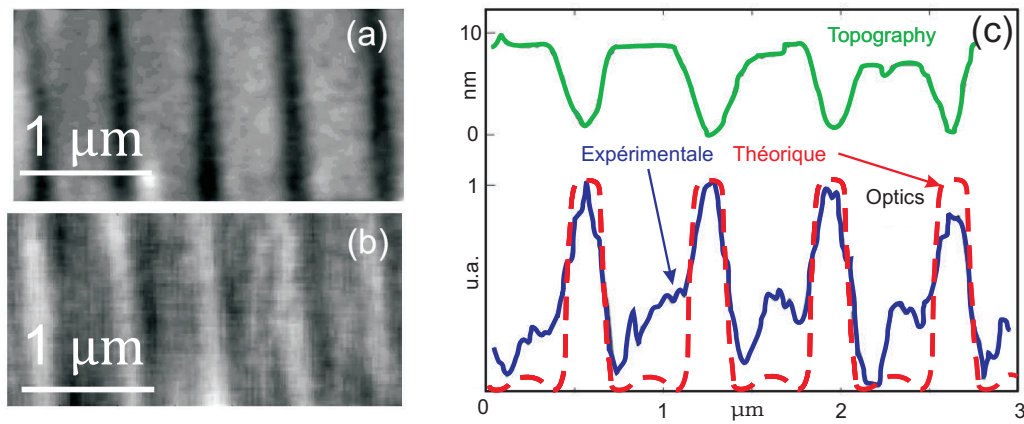


FIGURE 3.13 – (a) image topographique du réseau, (b) image SNOM restituée par la BNA et (c) profil de la topographie et de l'image optique suivant une ligne perpendiculaire aux traits du réseau. L'image optique est comparée à la simulation de l'intensité de la composante du champ électrique diffractée qui est parallèle à la direction de polarisation de la BNA (à une altitude de 10 nm).

En général, les cristaux photoniques sont définis par leurs périodes, leurs matériaux constituant, leurs nombres de dimensions (1D, 2D ou 3D), leurs designs et leurs dimensions. L'ensemble de ces critères définira le comportement et la plage de longueur d'onde de fonctionnement du cristal photonique. Ce comportement pourra être résumé dans le diagramme de bande du cristal photonique.

La structure retenue est développée au sein de l'INL qui est un partenaire du projet NANOEC dans lequel s'inscrit cette thèse [94]. Il s'agit d'un micro-laser à cristal photonique bidimensionnel de maille en nid d'abeille (honey comb) (cf. figure 3.15). L'effet laser est assuré par l'excitation d'un mode de Bloch lent au sein de la structure. Le diagramme de dispersion du cristal photonique est présenté sur la figure 3.14 [11]. Au point  $\Gamma$  ( $k_x=k_y=0$ , propagation selon  $(Oz)$ ) de la zone de Brillouin, il existe trois courbes de dispersion correspondant à trois modes à photons lents (courbes de dispersion plates) : le mode M monopolaire, le mode H hexapolaire et le mode D dipolaire. Les distributions d'intensité électrique théorique associées à ces modes sont représentées sur la figure 3.14 d) e) et f), respectivement. Dans cette étude nous nous intéresserons au mode monopolaire.



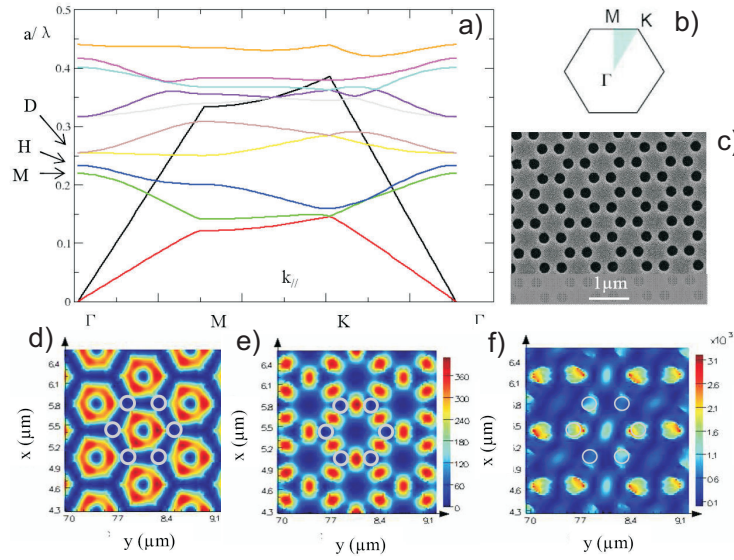


FIGURE 3.14 – a) Diagramme de bande du cristal photonique 2D considéré dans cette étude. b) zone de Brillouin du cristal photonique à nid d'abeille, c) Image MEB du cristal photonique à nid d'abeille, d) e) et f) répartitions d'intensité électrique théoriques à l'intérieur d'un cristal photonique pour les modes monopolaire, hexapolaire et dipolaire, respectivement [11].

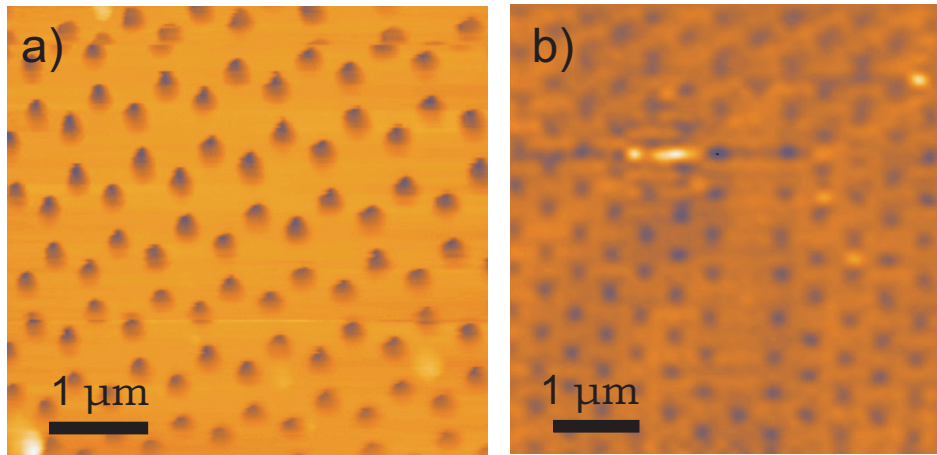


FIGURE 3.15 – Images topographiques de a) du cristal photonique à mode de Bloch lent monopolaire, b) un cristal photonique à mode de cavité.

Les paramètres du cristal considérés expérimentalement sont les suivants : le paramètre de maille "a" (distance entre deux motifs voisins) vaut 730 nm, le diamètre des trous vaut 245 nm et ceux-ci sont creusés dans une couche de 240 nm d'épaisseur d'InP (phosphore d'indium, indice optique de 3,17 à 1550 nm) déposée sur un substrat de silice. Le diagramme de bande de ce cristal supporte une bande plate au point  $\Gamma$  caractéristique

d'un mode de photon lent. La structure totale du cristal est d'environ  $20\ \mu\text{m}$  de côté. Cette structure permet d'obtenir un mode monopolaire à une longueur d'onde proche de  $1550\ \text{nm}$ . L'excitation des modes du cristal photonique est réalisée par la photoluminescence de 4 puits quantiques (InAsP) crûs à l'intérieur de la couche d'InP (cristal photonique actif). La photoluminescence des puits quantiques existe entre  $1350\ \text{nm}$  et  $1650\ \text{nm}$ .

Ce microlaser à mode de Bloch lent était pompé à  $780\ \text{nm}$  par une diode laser pulsée (grâce au générateur d'impulsions) avec un rapport cyclique de  $10\ \%$  et modulé à  $2\ \text{kHz}$ . Cette excitation se faisait par la face inférieure de l'échantillon comme montré sur la figure 3.10 grâce à l'utilisation d'un objectif ( $\text{NA} = 0.75$ ). Cet objectif générait un spot lumineux sur le cristal photonique de forme gaussienne et de largeur inférieure à  $10\ \mu\text{m}$ . Le champ optique créé aux longueurs d'onde des télécommunications ( $\lambda=1611\text{nm}$ ) à la surface du cristal est collecté en champ proche par la pointe BNA puis transmis par la fibre optique jusqu'à la photodiode. Ce signal est ensuite filtré par une détection synchrone avec le signal de référence du laser.

La réponse optique de ces structures fut calculée théoriquement par une méthode FDTD 3D. Les répartitions d'intensité électrique en surface du cristal photonique sont montrées sur la figure 3.16 a) [11]. Il y a formation d'anneaux lumineux polarisés azimuthalement à l'intérieur de chaque maille du cristal comme il est montré sur les figures 3.16 a) et b). Cette polarisation est intéressante car elle permettra de connaître sans ambiguïté la propriétés d'analyse vectorielle de la nanosonde [95, 96].

Les caractérisations en champ proche du mode de Bloch lent sont reportées sur la figure 3.17. Elles ont été réalisées pour deux orientations perpendiculaires de la BNA (indiquées en insert). Nous constatons que la forme générale et la structure du mode de Bloch dans les deux images est conforme aux prédictions théoriques (cf. figure 3.18 (a) et (b)). Cela prouve que la BNA est capable de restituer une image fidèle de la distribution de champ proche du mode de Bloch lent. Nous remarquons cependant que la série de petits

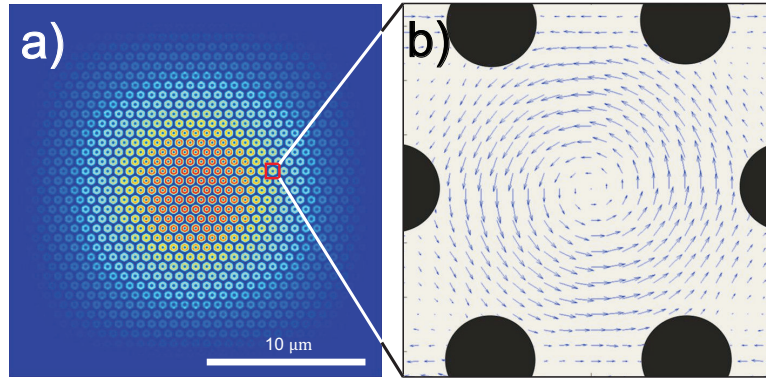


FIGURE 3.16 – a) Intensité électrique à 10 nm de la surface d’un cristal photonique à mode de Bloch, b) Champ électrique à l’intérieur de l’un des motifs du cristal photonique [11].

anneaux lumineux présents dans chacune des mailles est ici remplacée par une succession de petites structures à deux taches lumineuses alignées perpendiculairement à la direction d’analyse vectorielle de la BNA. Cette structuration particulière de l’image (différente du champ sondé) est la preuve que la BNA est un nanocollecteur polarisant. Les propriétés vectorielles de collection de la BNA sont révélées ici de manière claire par la polarisation azimutale des anneaux lumineux, comme montré sur la figure 3.18. Les figures 3.18 (a) et (b) représentent la simulation des distributions d’intensité des composantes  $E_x$  et  $E_y$  du champ électrique transverse à la surface du cristal. Les figures 3.18 (c) et (d) reportent les images obtenues par la BNA, lorsque celle-ci est orientée selon les directions ( $O_x$ ) et ( $O_y$ ) définies dans les simulations (cf. inserts). Nous constatons un très bon accord entre les résultats expérimentaux et théoriques, ce qui prouve la capacité de la BNA à donner des images en champ proche de l’information sublongueur portée par une composante unique du champ électrique optique (la composante parallèle aux ailes métalliques de la nano-antenne). La BNA peut donc jouer le rôle de nano-analyseur de champ électrique optique pour des applications d’imagerie SNOM. Le taux de polarisation de la BNA dans son rôle de nanosonde SNOM polarisante a été estimée à l’aide de ces images à une valeur minimale de 1 :150. Ces propriétés polarisantes prouvent que la collection locale du champ est bien due à l’effet d’antenne propre à la BNA.

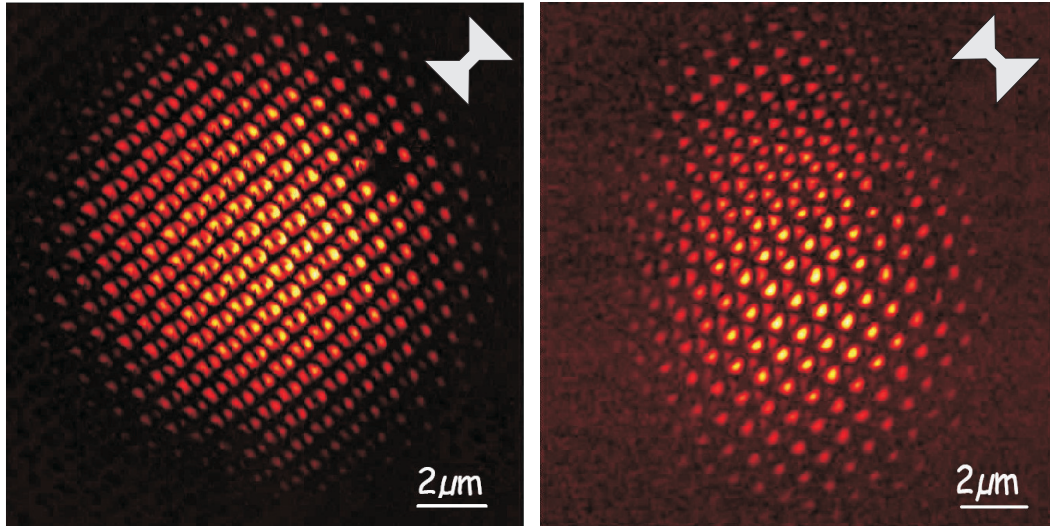


FIGURE 3.17 – Images expérimentales du signal optique du cristal photonique à mode de Bloch obtenues avec la pointe BNA en fonction de son orientation [11].

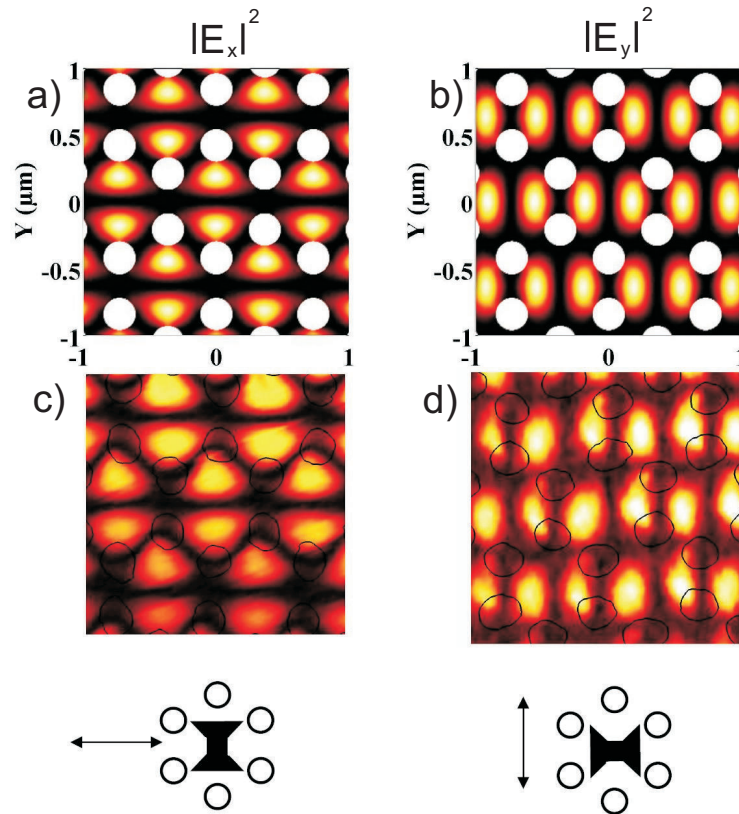


FIGURE 3.18 – a) et b) Image théorique des cartographies de champ électrique à 10 nm de la surface du cristal photonique à mode de Bloch. c) et d) Images expérimentales du signal optique obtenues avec la pointe BNA en fonction de son orientation [11].

Par contre il est assez difficile d'estimer la capacité de résolution de la BNA avec cet échantillon car le mode de Bloch n'est pas porteur de fréquences spatiales suffisamment grandes. Nous avons cependant estimé une valeur en convoluant la réponse impulsionnelle théorique de la BNA (cf. chapitre 2, figure 2.14) avec la simulation par FDTD du mode de Bloch. Le résultat de cette convolution est comparé avec les images expérimentales. Le bon accord entre les résultats montre que la résolution de la BNA est de l'ordre de 75 nm ( $\lambda/20$ ). Ceci démontre une nouvelle fois que le processus de collection optique par la BNA dépend du gap et non de l'ouverture entière.

Nous avons également comparé les images obtenues avec la BNA à celles restituées par une nano-ouverture circulaire. Ces deux types d'ouvertures ont été effectuées sur des pointes fibrées présentant des caractéristiques identiques. Ainsi, nous pouvons réaliser une étude comparative fiable des performances et propriétés de ces nano-ouvertures. La figure 3.19 reporte l'image en champ proche du mode de Bloch réalisée à l'aide d'une pointe à nano-ouverture circulaire de 100 nm de diamètre environ. Nous observons que l'image en champ proche du mode de Bloch est perturbée (modulée) par une enveloppe optique large et de forme annulaire. Cette structure large est inexistante sur les images obtenues par la BNA. Elle traduit le fait que la nano-ouverture circulaire, contrairement à la BNA, couple fortement la composante champ lointain du mode de Bloch qui se trouve être annulaire (cf. figure 3.20 représentant l'image champ lointain du cristal photonique en mode laser à travers un objectif de microscope). Contrairement à la BNA, l'ouverture circulaire atténue le champ évanescent par rapport au champ propagatif dans le processus de collection. Ceci vient du fait que l'émission laser, très directive, est dirigée dans la direction de la pointe (au point  $\Gamma$  du diagramme de bande du cristal photonique). Une des propriétés remarquables de la BNA est sa capacité à restituer une image en champ proche fidèle aux prédictions théoriques d'un objet présentant une très forte émission dans la direction de la pointe. Une autre propriété remarquable de la BNA est qu'elle collecte l'information optique en champ proche avec une efficacité de collection 150 fois supérieure à celle de

---



la nano-ouverture circulaire de 100 nm de diamètre. Notons que ce gain en rendement de collection s'accompagne également d'un fort gain en résolution puisque la résolution de la nano-ouverture circulaire a été estimée à  $\lambda/7$  (contre  $\lambda/20$  pour la BNA).

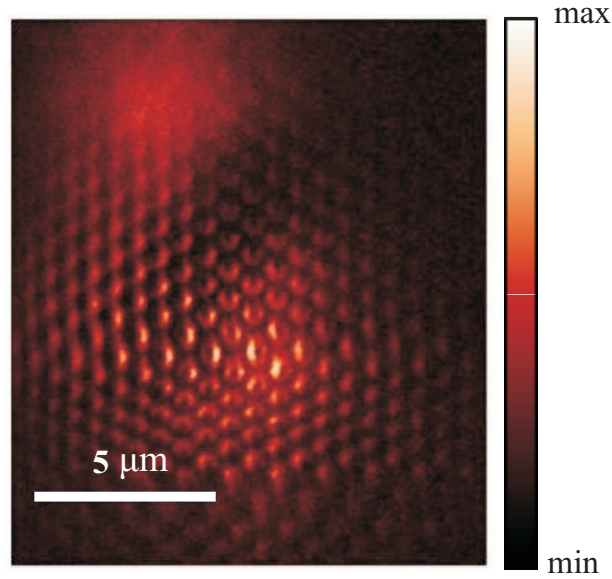


FIGURE 3.19 – Signaux optiques champ proche obtenus par une pointe métallisée à ouverture circulaire [11].

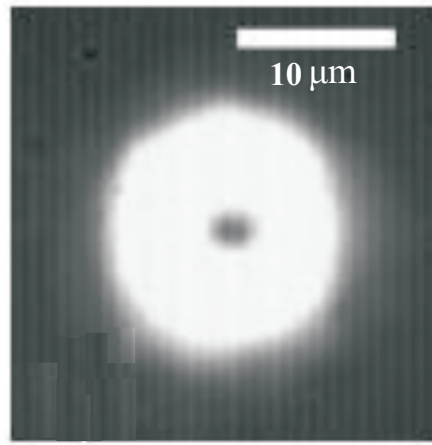


FIGURE 3.20 – Image en champ lointain du mode du cristal photonique (collecté à travers le microscope inversé par l'objectif d'ouverture numérique de 0.75) [11].

En conclusion, nous avons démontré que la BNA est capable de donner une analyse vectorielle précise, détaillée et hautement résolue du champ électrique présent d'un mode de

---

Bloch lent. La résolution a été estimée à  $\lambda/20$ . La BNA est également capable de restituer une image fidèle du champ proche à la surface du cristal photonique dans une configuration à forte émission en champ lointain en direction de la pointe. Les nano-ouvertures circulaires échouent dans ce rôle. Les niveaux de signal collecté sont enfin deux ordres de grandeur supérieurs dans le cas de la BNA par rapport à l'ouverture circulaire avec une capacité de résolution très supérieure. La BNA est donc parfaitement adaptée à jouer le rôle de nanosonde SNOM pour cartographier les propriétés vectorielles du champ proche électrique de modes de Bloch lents de cristaux photoniques. Nous n'avons finalement pas noté de couplage particulier entre le cristal photonique et la BNA durant l'acquisition des images (pas de décalage fréquentiel de l'émission laser, etc).

Nous avons finalement constaté que, malgré ses propriétés résonantes, la nano-antenne placée au contact du cristal photonique ne perturbe pas l'émission laser. Elle restitue donc une image fidèle et détaillée de l'intensité électrique du mode de Bloch. Ceci s'explique aisément par le fait que la nano-antenne interagit avec un mode très étendu (dont le volume est très grand devant le volume du mode optique de la nano-antenne). Cette configuration reste néanmoins un cas particulier d'imagerie et un élargissement de notre investigation à des distributions lumineuses plus confinées, donc plus sensibles aux modifications de leur environnement, nous a paru indispensable. Nous avons ainsi inspecté une configuration alternative de microlaser pour laquelle l'effet laser n'est plus dû à l'excitation d'un mode de Bloch lent étendu mais à un mode confiné de nano-cavité à cristal photonique.

#### 3.4.4 Cristal photonique à mode de Cavité

L'utilisation d'une cavité active représente 3 intérêts par rapport aux cavités passives largement étudiées par SNOM : (1) l'excitation du mode de cavité est relativement simple (il n'y a pas ici besoin de coupler la nano-cavité à un guide à cristal photonique pour l'exciter [97]), (2) le niveau du signal du champ proche est élevé et (3) très peu de nanocavités

---

actives ont été proposées dans la littérature.

Un effort important a été porté sur la caractérisation des propriétés spatiales et spectrales des modes de cavités passives à cristaux photoniques par microscopie en champ proche [98, 99, 100, 101]. Une cartographie résolue en polarisation de la distribution vectorielle du champ électrique a notamment été mise en évidence via l'utilisation de pointes diélectriques fibrées associées à un polariseur placé en sortie de fibre [102]. Il a été démontré également que des sondes locales fines peuvent perturber de manière significative les cavités et ainsi les accorder en longueur d'onde précisément et de manière réversible en positionnant judicieusement la pointe au voisinage des structures [103, 104, 105]. Nous pouvons alors nous attendre à ce que la BNA, au-delà de son rôle initial de nanosonde polarisante, perturbe fortement l'émission laser de la structure de par sa nature résonante.

Le nano-cavité active étudiée, baptisée CL7, est obtenue en créant un défaut de 7 trous successifs dans un cristal photonique de maille triangulaire (figure 3.15) [100]. Cette structure a été fabriquée à l'INL, partenaire du projet NANOEC. Le cristal photonique est conçu de telle sorte qu'il présente une large bande interdite spectrale. La figure 3.21 reporte le diagramme de bande d'un tel cristal photonique simulé pour un paramètre de maille de 440 nm et un diamètre de trou de 130 nm fabriqué dans du silicium ( $n = 3.46$ ). Pour une excitation de la cavité polarisée TE, il existe une bande interdite alors que pour une excitation en polarisation TM, celle-ci n'existe pas. Cette bande interdite permet de rendre le cristal photonique parfaitement réfléchissant avec très peu de perte. Dès lors, l'ajout d'un défaut dans le cristal, en l'occurrence l'enlèvement d'une rangée de 7 trous, va permettre de confiner très fortement la lumière en créant des modes de cavité à l'intérieur même du défaut.

Le cristal photonique sondé par nos BNAs présente un diagramme de bande sensiblement identique à celui présenté sur la figure 3.21. La structure se trouve en effet être



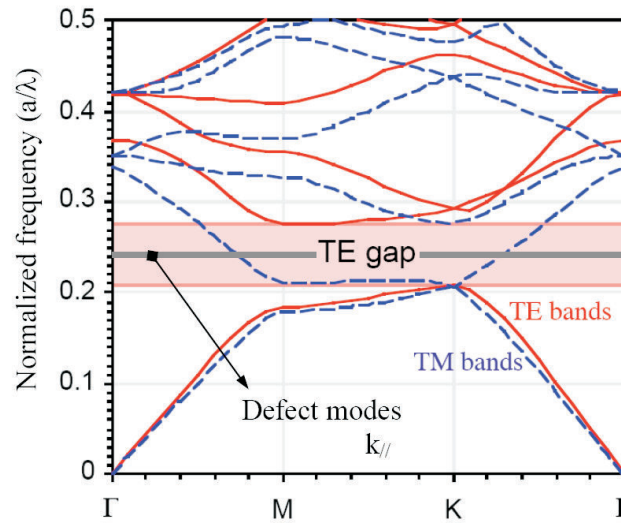


FIGURE 3.21 – Diagramme de bande d'un micro-laser à cristal photonique (2D) à mode de cavité pour un paramètre de maille de 440 nm et des trous de 130 nm de diamètre fabriqués dans une couche de silicium [11].

légèrement différente du cristal photonique à cavité CL7 dont le diagramme de bande est représenté ici. Le paramètre de maille vaut 420 nm et les trous, de diamètre de 200 nm, sont creusés dans une couche d'InP de 250 nm d'épaisseur.

Les distributions d'intensité théoriques (champ électrique) des différents modes de la cavité, simulées par méthode FDTD 3D à une hauteur de 18 nm de la surface du cristal, sont reportées sur la figure 3.22. Sont représentés les 4 premiers modes portés par la structure dont les longueurs d'ondes de résonance sont (a)  $\lambda=1444$  nm ( $Q=1000$ ), (b)  $\lambda=1483$  nm ( $Q=1615$ ), (c)  $\lambda=1517$  nm ( $Q=1500$ ) et (d)  $\lambda=1530$  nm ( $Q=5800$ , mode fondamental) [100]. Seul le mode fondamental présente un facteur de qualité suffisamment grand pour créer un effet laser dans la cavité. Les pertes associées aux autres modes sont trop importantes. L'émission laser sera donc portée uniquement par le mode fondamental de la cavité.

De même que pour le cristal photonique à mode de Bloch, des puits quantiques (In-AsP) situés dans l'épaisseur du cristal sont pompés optiquement et excitent directement les modes de cavité formé par les lacunes du cristal.

La figure 3.23 reporte les simulations des intensités  $|E_x|^2$  et  $|E_y|^2$  des composantes

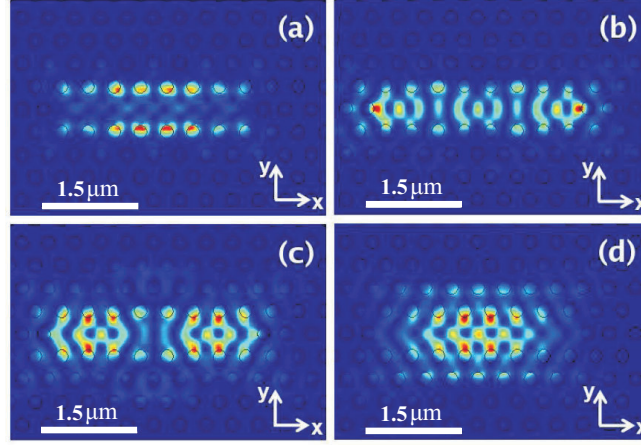


FIGURE 3.22 – Distributions d'intensité électrique à la surface d'un cristal photonique à mode de cavité (CL7) pour les 4 premiers modes de la cavité (paramètre de maille de 420 nm, trous de 200 nm de diamètre gravés dans une couche de 250 nm d'INP). a)  $\lambda = 1444$  nm,  $Q = 1615$ , b)  $\lambda = 1483$  nm,  $Q = 1000$ , c)  $\lambda = 1517$  nm,  $Q = 1550$ , d) mode fondamental :  $\lambda = 1530$  nm,  $Q = 5800$ .

vectorielles du champ électrique transverse du mode fondamental selon les axes de symétrie (0x) et (0y) de la cavité. Les simulations ont été réalisées par FDTD 3D à l'INL. Les distributions lumineuses portées par ces composantes orthogonales du champ électrique sont aisément dissociables l'une de l'autre.

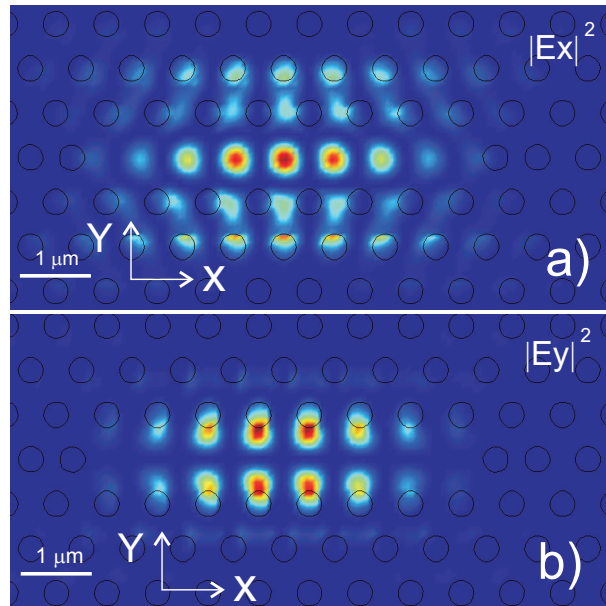


FIGURE 3.23 – Cartographies théoriques du cristal photonique à modes de cavité de a) l'intensité électrique selon (0X), b) l'intensité électrique selon (0Y).

L'investigation SNOM de la nanocavité par la BNA sera menée avec trois types de pompages (d'excitation) de la nanocavité active : (1) le pompage résonant dans lequel la structure est excitée à la longueur d'onde de résonance de la cavité, (2) le pompage optique en dessous du seuil laser (mode de photoluminescence de la structure) et (3) le pompage optique permettant à la structure de laser (pompage laser). Cette étude permet de mieux comprendre à la fois le fonctionnement de la BNA, mais aussi celui de la nano-cavité et le couplage entre les deux éléments. Dans les deux derniers cas de figure, le pompage optique est réalisé par une diode pulsée à  $\lambda=808$  nm.

### Excitation en mode pompage résonant

L'avantage de cette excitation vient du fait que l'on peut sélectionner le mode de la cavité que l'on veut exciter en choisissant la longueur d'onde d'excitation. Pour cela, nous utilisons un laser accordable dans la gamme des télécommunications (celui utilisé précédemment). Le faisceau laser est injecté dans le microscope inversé supportant l'échantillon et la tête SNOM, comme indiqué sur la figure 3.10. Le faisceau est modulé à une fréquence de 1 KHz pour la réalisation d'une détection synchrone du signal collecté par la BNA (augmentation du rapport signal à bruit). La focalisation du faisceau sur l'échantillon est assurée par un objectif ( $\times 20$ , ON=0.40). Les mesures spectrales de l'émission laser réalisées à l'INL ont indiqué que la cavité étudiée présente une émission laser à la longueur d'onde de 1575.43 nm,. Nous avons donc réglé la longueur d'onde du laser à cette valeur et la puissance du faisceau à 22 mW. La figure 3.24 montre l'image de la structure réalisée par une BNA dont la direction est indiquée en insert. La BNA détecte ici la composante Ex du champ électrique parallèle au grand axe de la cavité. L'image présente une rangée de 7 spots lumineux alignés dans la direction de la cavité. Cette image est conforme à la distribution théorique de l'intensité de la composante du champ électrique qui est parallèle à l'axe d'analyse vectorielle de la BNA (figure 3.23 a)). En revanche, lorsque nous avons tourné la pointe pour tenter d'obtenir la répartition portée par la composante vectorielle orthogonale (cf. figure 3.23 b)), nous n'obtenions plus aucun signal optique. Ces

---

résultats nous font penser que le mode n'est pas parfaitement "installé" dans la cavité. Cela justifierait tout d'abord le faible rapport signal-à-bruit obtenu sur la figure 3.24 b), qui est d'environ 1 :1,25. Ensuite, la structure fine de la distribution optique du mode dans la cavité ne reflète pas fidèlement la distribution d'intensité du mode fondamental sensé être excité à cette longueur d'onde. Nous interprétons ce résultat par le fait que la longueur d'onde excitatrice n'est en fait pas exactement celle de la résonance de la nanocavité. Nous avons fait l'erreur de prendre en compte la valeur de la longueur affichée sur le laser (grandeur non mesurée au spectromètre). Nous nous sommes ensuite rendu compte que les valeurs des longueurs d'ondes de résonances d'autres cavités indiquées par l'INL étaient légèrement décalées par rapports aux valeurs mesurées à FEMTO-ST (sans doute un problème de calibration d'un des spectromètres). Un phénomène de couplage entre la BNA et la cavité peut également être responsable d'un décalage fréquentiel de la résonance de la cavité.

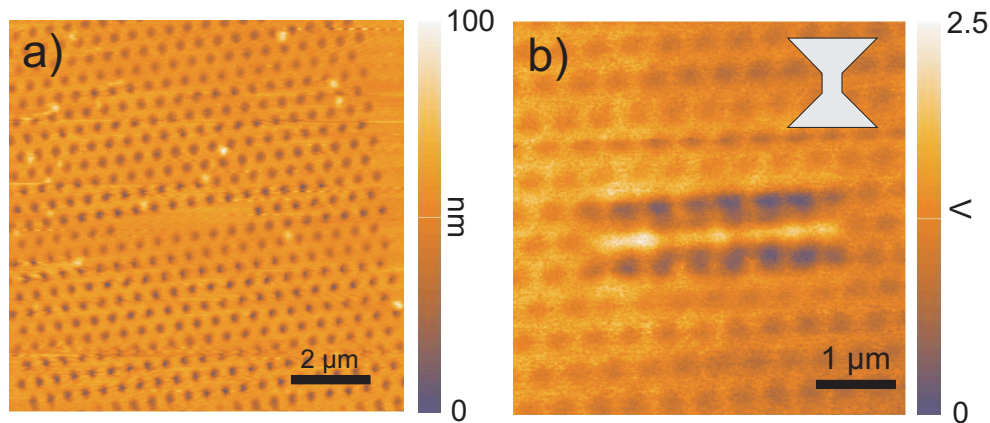


FIGURE 3.24 – a) Images topographiques d'un cristal photonique à mode de cavité, b) image optique au centre de la cavité du cristal photonique pour un pompage résonnant.

### Excitation en mode de photoluminescence

Nous cherchons ici à sonder optiquement la cavité à cristal photonique en mode de photoluminescence simple. Notons que cette étude a été menée sur une structure différente de celle considérée précédemment. L'excitation des puits quantiques se fait ici à la longueur

---

d'onde de 808 nm par l'utilisation d'un laser pulsé, avec des impulsions de largeur de 50 ns toutes les 100 ns (c'est à dire un rapport cyclique de 50 % : la dose de photons pompes est trop importante pour que la nano-cavité puisse laser). Le faisceau pompe est également modulé à la fréquence de 2 kHz afin de réaliser une détection synchrone du signal collecté par la BNA. La focalisation du faisceau sur l'échantillon est assurée par la face inférieure de l'échantillon par un objectif  $\times 60$  d'ouverture numérique de 0.7 comme montré sur la figure 3.10. La tache de focalisation centrée sur la cavité a une largeur de 4 microns environ. Le signal de pompe collecté par la BNA est filtré par un filtre à réjection de bande centré à 808 nm. Le signal de photoluminescence transmis est détecté par la photodiode. L'image de la cavité par la pointe BNA pour cette excitation est montrée sur la figure 3.25 a). Le papillon en insert représente la direction de l'ouverture durant le balayage. L'image optique obtenue pour cette direction d'antenne ne ressemble pas à la distribution théorique de l'intensité de la composante du champ électrique du mode fondamental parallèle à l'axe de la nano-antenne (figure 3.23 a)). Nous avons d'abord pensé que l'antenne au contact du cristal perdait ces capacités polarisantes. Nous avons alors placé en sortie de fibre (avant le détecteur) un polariseur et un contrôleur de polarisation sur la fibre (boucle de Legendre) réglés de telle sorte que l'on soit certain que le champ couplé au détecteur soit polarisé dans la direction d'analyse de la BNA. L'image obtenue dans cette configuration (figure 3.25 b)) est identique à celle obtenue avec la BNA seule (figure 3.25 a)). Cela prouve que la BNA a conservé ses propriétés polarisantes présentées précédemment durant l'expérience. Notre explication fut alors que la cavité était multi-mode et que la BNA collectait l'information de plusieurs modes qui se superposent de manière incohérente. Ceci fut confirmé par le spectre en champ lointain de l'émission de photoluminescence (réalisé en l'absence de BNA, par le biais du signal optique collecté via l'objectif du microscope utilisé pour exciter le cristal) (figure 3.26). Ce dernier comporte trois pics d'émission bien distincts, correspondant a priori aux trois premiers modes de la cavité. Si cette explication est à notre avis fondée, nous nous sommes aperçus après coup que le spectre présente des pics de résonance extrêmement fins ( $Q=20000$  environ

---

pour les 3 pics) et à des positions spectrales différentes des prédictions théoriques, sauf pour le mode fondamental. L'origine des résonances mises en jeu ici est donc discutable et relève peut être de l'excitation de modes de cavités lasers longitudinales... Notons que les mesures spectrales et les acquisitions SNOM ont été réalisées sur deux campagnes expérimentales différées dans le temps l'une par rapport à l'autre.

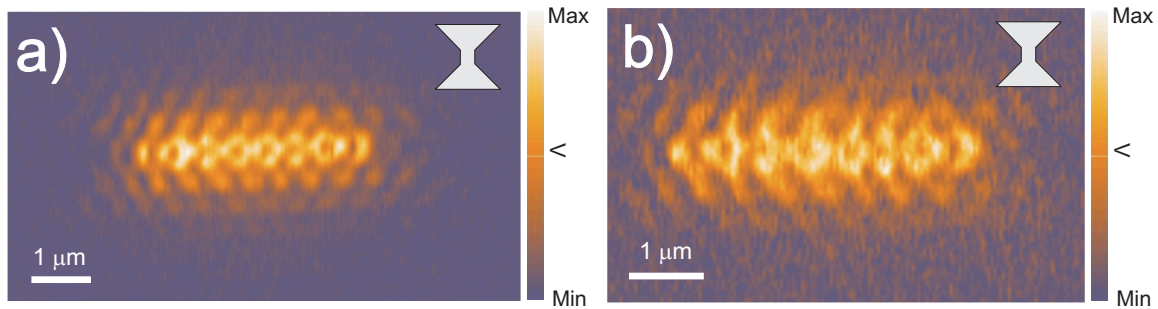


FIGURE 3.25 – image optique au centre de la cavité du cristal photonique a) sans contrôleur de polarisation et polariseur et b) avec un contrôleur de polarisation et polariseur.

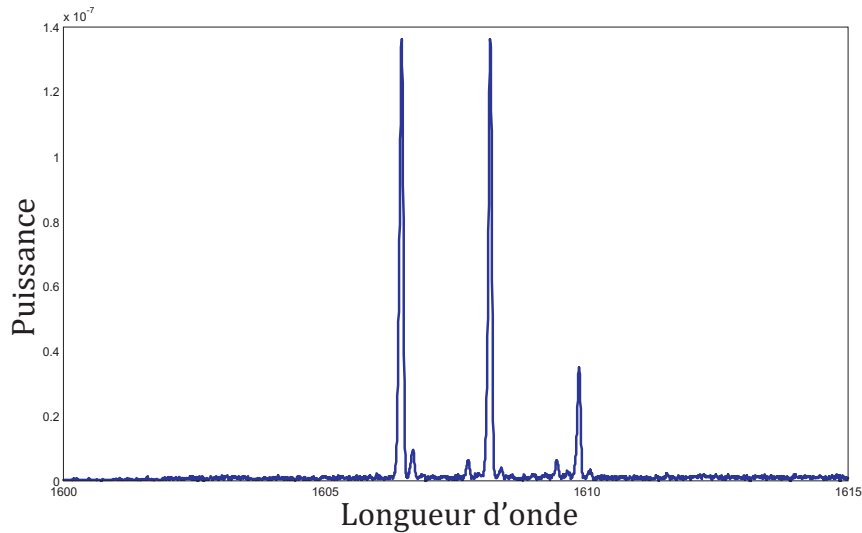


FIGURE 3.26 – Spectre champ lointain de la cavité en photoluminescence.

### Excitation en mode laser

La nano-cavité active à cristal photonique est à nouveau pompée optiquement à une longueur d'onde de 808 nm. La diode laser est cependant pulsée avec un rapport cyclique de

10 % (impulsion de 10 ns toutes les 100 ns) conforme à l'émission laser de la structure. Comme auparavant, le signal de pompe est modulé à une fréquence de 2 kHz pour réaliser une détection synchrone du signal collecté en champ proche par la BNA. La configuration d'excitation du cristal photonique est identique à la précédente, ainsi que la configuration de détection SNOM par BNA. La première manipulation consista à caractériser spectralement l'émission en champ lointain de la nano-cavité (figure 3.27). Le spectre mesuré par collection du rayonnement optique par l'objectif couplé à un analyseur de spectres (Anritsu MS9710B). Nous observons un seul pic dans le spectre, centré sur la longueur d'onde de 1609,2 nm. Ceci prouve que l'émission est assurée par un seul mode de la cavité, contrairement à ce qui a été constaté pour le mode de photoluminescence simple. Compte-tenu de ce qui a été dit auparavant, il ne peut s'agir que d'une émission laser portée par le mode fondamental. Le facteur de qualité de la résonance de cavité (du mode fondamental) associée à l'émission laser est de 2600 (contre 5800 en théorie).

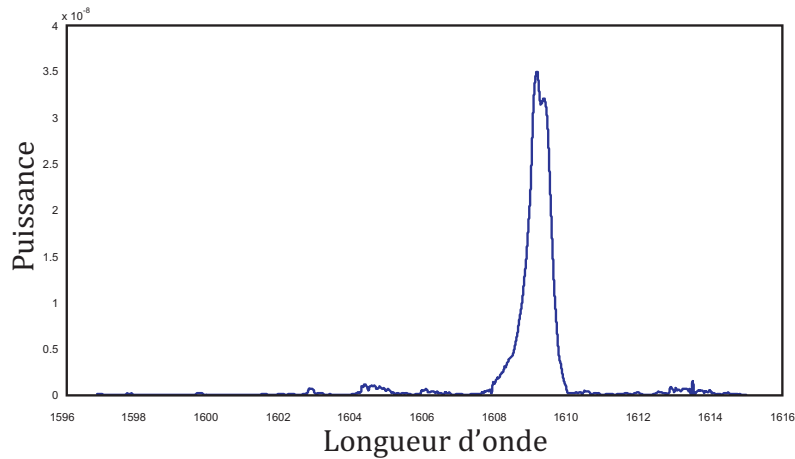


FIGURE 3.27 – Spectre en champ lointain de la cavité en mode laser.

Les figures 3.28 c) et d) reportent les images SNOM du mode laser de la nano-cavité obtenues avec la BNA. Les inserts indiquent dans chacune des deux images la direction de la BNA par rapport à la cavité durant l'acquisition. Les figures 3.28 a) et b) représentent les distributions théoriques de l'intensité des composantes vectorielles du champ électrique du mode fondamental selon le petit et grand axe de la cavité, respectivement.

Les intensités ont été simulées par FDTD 3D à 18 nm de la surface. Le très bon accord entre la théorie et l'expérience prouve que la BNA est une sonde SNOM performante pour analyser vectoriellement le champ électrique modal de nano-cavités. L'analyse vectorielle fine réalisée par la BNA permet d'identifier sans ambiguïté le mode de cavité en jeu dans le processus laser, ce qu'une pointe conventionnelle à ouverture circulaire ne peut offrir. Ces résultats, associés à ceux obtenus pour le cristal photonique à mode de Bloch, valident l'utilisation de la BNA comme sonde locale SNOM pour la cartographie vectorielle du champ électrique optique. Cette conclusion est toutefois restreinte à l'inspection d'échantillons diélectriques.

Les figures 3.29 a) et c) présentent deux profils de l'image de la figure 3.28 d) selon deux lignes indiquées en noir sur la 3.29 b). La figure 3.29 c) permet de mesurer le rapport signal-à-bruit lié aux acquisitions du mode par la BNA à une valeur avoisinant 50/1. Un tel rapport assure des cartographies contrastées de grande qualité. Ce résultat démontre également la très grande efficacité de collection de la BNA par rapport aux pointes à ouverture circulaire (comme il a été démontré précédemment pour le cristal à mode de Bloch lent).

La mesure du taux de polarisation de la BNA utilisée comme nanosonde SNOM a été réalisée à partir de la courbe de la figure 3.29 a). Pour le cristal photonique à mode de Bloch, l'estimation de ce paramètre pouvait être faite sur une image unique (pour une direction unique de la BNA) du fait que l'intensité est constante sur chacun des anneaux lumineux à l'intérieur d'un même motif du cristal. Dans le cas du cristal photonique à mode de cavité, l'étude théorique révèle que les composantes  $E_x$  et  $E_y$  du champ électrique donnent lieu à des distributions d'intensités qui ne sont plus de même amplitude. Le rapport entre les intensités maximales des spots 1 et 2 de la figure 3.30 est de 1.38. Cette valeur sera considérée comme facteur correctif permettant d'estimer le taux de polarisation à partir du profil de la figure 3.29 a). Le rapport entre le niveau de signal entre

---



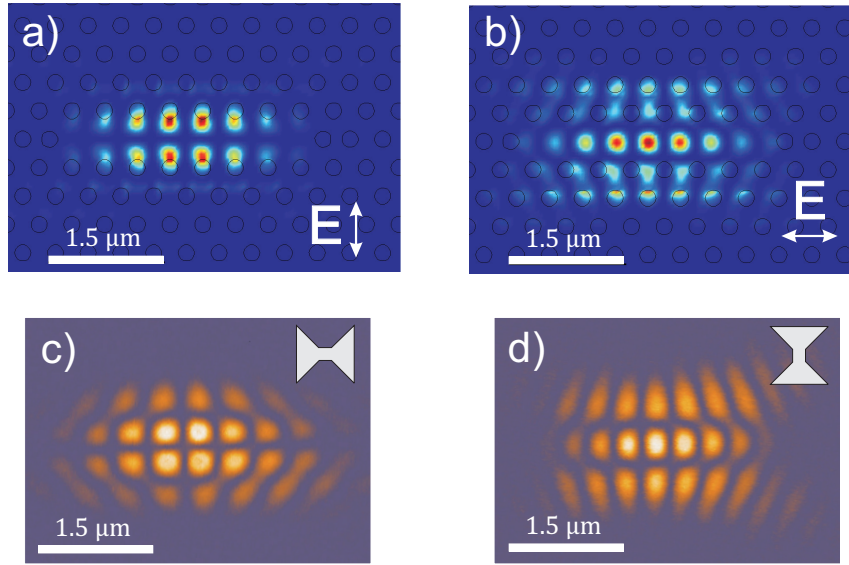


FIGURE 3.28 – Distribution d'intensité théorique pour a) la composante  $E_y$  et b) la composante  $E_x$  du champ électrique du mode fondamental de la nano-cavité, c) et d) images optiques en champ proche expérimentales de la nano-cavité en mode laser, en fonction de l'orientation de la BNA (voir inserts).

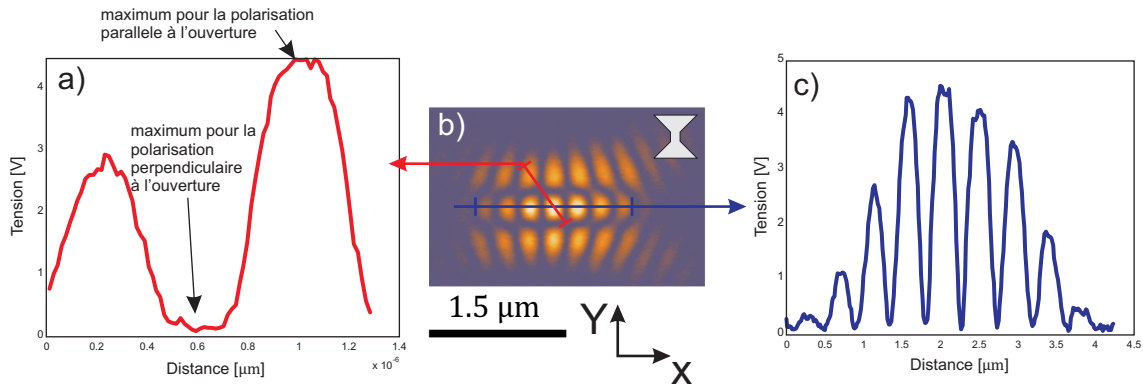


FIGURE 3.29 – a) profil de l'image de b) (cf. figure 3.28 d)) entre deux maxima locaux. Le minimum correspond à un maxima de l'intensité du champ électrique filtrée par la BNA. b) Image optique de la cavité par la pointe BNA, c) profil de l'image optique b) selon le grand axe de la nano-cavité.

le minimum du profil (maximum d'intensité local pour le champ filtré par la BNA) et le maximum de droite est de  $1/218$ . Après application du facteur de correction, nous obtenons à un taux de polarisation de  $1:300$ . La BNA joue donc pleinement son rôle de nano-polariseur en champ proche.

Le balayage obtenu par la pointe BNA est montré sur la figure 3.28, le papillon indique l'orientation de l'antenne durant le balayage. Sur cette figure sont comparées les images optiques expérimentales obtenues par la pointe en fonction de l'orientation de la nano-ouverture, avec les distributions d'intensité électrique théorique selon X et Y calculées par FDTD 3D à 18 nm de la surface. Comme nous pouvons le voir, un très bon accord entre la théorie et l'expérience est observé, de plus lorsque l'on regarde une coupe transverse de l'image sur la figure 3.28 d) (figure 3.29 c)), nous trouvons un rapport signal sur bruit de 50, alors qu'il est reporté comme valant 10 dans le cas d'une pointe à ouverture circulaire [11]. Ce résultat démontre sur le gain en transmission, l'intérêt d'utiliser une structure résonante en bout de pointe champ proche.

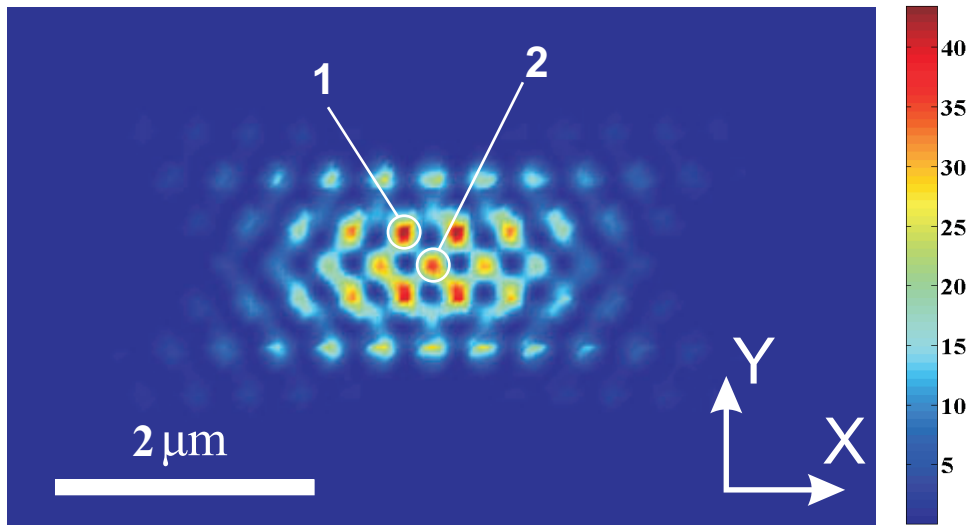


FIGURE 3.30 – Distribution théorique d'intensité électrique en champ proche du mode fondamental du cristal photonique à CL7.

En conclusion, nous avons validé la BNA comme sonde locale SNOM performante pour l'investigation de mode de nano-cavités. Nous avons confirmé les propriétés d'analyse vectorielle du champ proche électrique optique de la BNA sur un échantillon présentant, à la différence de l'échantillon précédent développant un mode de Bloch étendu, un mode optique très confiné spatialement. La BNA nous a permis de réaliser une étude optique et spectrale exhaustive de la nano-cavité active sous trois configurations de pompage op-

tique différentes : pompage résonant, pompage en dessous du seuil laser et pompage laser. L'étude en pompage résonant n'a malheureusement pas donné de résultats probants car nous n'avons pas pu accorder la longueur d'onde d'excitation à la longueur d'onde de résonance de la nano-cavité. Cela prouve la très bonne qualité des réalisations de la nano-cavité par l'INL qui donne lieu à des résonances à forts facteurs de qualité (pics spectraux très étroits). L'étude en mode de photoluminescence a démontré le caractère multi-mode de la nano-cavité sous cette excitation. Mais une étude plus approfondie est nécessaire pour déterminer l'origine des pics de résonance observés dans le spectre champ lointain. En mode laser, la BNA a enfin révélé de manière non-ambigüe la nature vectorielle du mode fondamental par lequel l'émission laser est générée. La caractérisation SNOM par BNA de la nano-cavité en mode laser présente cependant une différence majeure avec celle du mode de Bloch lent. Si l'inspection du mode de Bloch a été réalisée à une distance sonde/échantillon de 10 nm environ, l'inspection du mode de cavité a dû être réalisée à une distance sonde/échantillon de 400 nm environ. A des hauteurs inférieures, des couplages optiques importants entre la cavité et la BNA perturbent fortement les propriétés d'émission du microlaser. Cette étude n'a pu être présentée ici car les résultats n'ont pour la plupart pas encore été traités. Cette partie de ma thèse sera en revanche présentée lors de ma soutenance orale.

### 3.4.5 Echantillon Plasmonique

La caractérisation d'échantillons diélectriques par la pointe BNA étant faite, intéressons-nous à des structures métalliques et plasmoniques. Les résonances mises en jeu pour ce type d'objet sont de même nature que celles de la BNA en termes de facteur de qualité, il sera intéressant de connaître le comportement de la pointe BNA sur ces derniers.

Le laboratoire GEMaC (Groupe d'Etude de la Matière Condensée) de Versailles, partenaire du projet ANR NANOEC, est spécialisé dans la fabrication d'échantillons plas-

moniques composés d'une couche d'or semi-continue au seuil de percolation (figure 3.31) [106]. Ces échantillons sont fabriqués par évaporation thermique d'or sur un substrat de verre, à température ambiante et sous ultravide ( $10^{-9}$  torr).

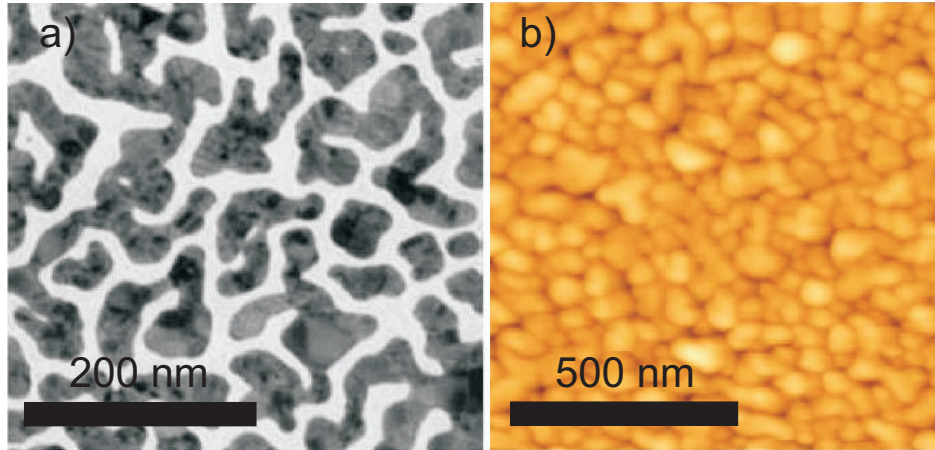


FIGURE 3.31 – a) Image MEB et b) image topographique d'une couche mince d'or semi-continue au seuil de percolation.

Comme auparavant, nous cherchons ici à réaliser deux acquisitions SNOM de l'échantillon (sur une même zone) pour deux directions orthogonales de la BNA. Plutôt que de tourner de  $90^\circ$  la pointe à nano-antenne entre les deux acquisitions, nous avons opté pour la rotation de l'échantillon et de la polarisation incidente. Le caractère aléatoire de la couche d'or semi-continue fait qu'il est très difficile de se repérer sur l'échantillon, et donc de venir scanner la même zone après avoir tourné (et inévitablement déplacé latéralement) l'échantillon. Pour remédier à cela, nous avons dû créer des repères sur la couche métallique. Pour cela, disposant de deux échantillons, nous avons créé ces repères par deux techniques de nano-fabrication différentes : l'usinage par FIB et l'usinage par laser femto seconde. La difficulté rencontrée lors de l'utilisation du FIB était liée à un effet d'accumulation de charge sur la couche semi-continue non suffisamment conductrice lors de la phase d'usinage. Ce phénomène rendait impossible la mise au point du FIB sur l'échantillon et donc la fabrication de ces repères. Pour remédier à ce problème, nous avons dû déposer en salle blanche une couche de chrome d'environ 5 nm d'épaisseur sur

---

la couche d'or de manière à rendre l'ensemble conducteur. Nous avons ensuite usiné la surface par FIB et enfin, par une solution "chromium etching", nous avons retiré la couche de chrome pour ne garder que celle d'or. L'usinage de la couche d'or par laser fs n'a pas posé de problème particulier. Les motifs obtenus par ces deux techniques sont représentés sur la figure 3.32.

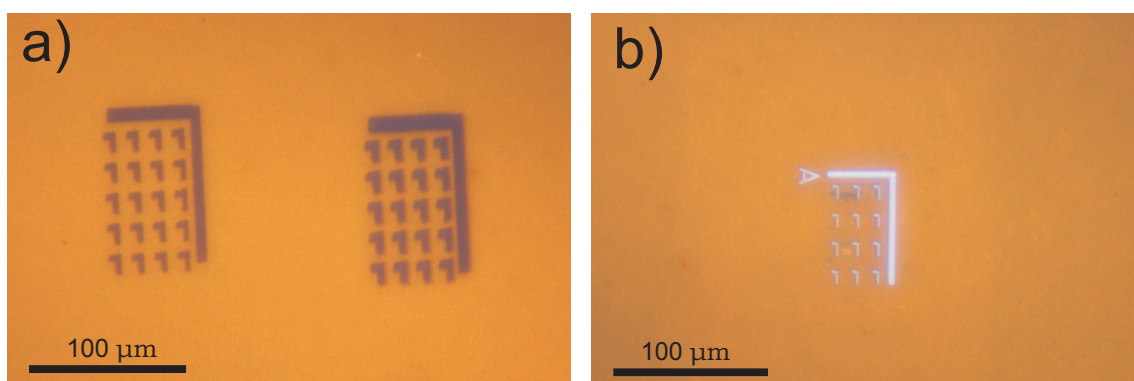


FIGURE 3.32 – Images au microscope optique classique de la couche d'or semi continue au seuil de percolation avec les repères gravés a) au laser fs, b) par FIB.

Les repères sont en forme de L placés en matrice dans un repère plus large également en forme de L (pour un repérage rapide au microscope optique à faible grossissement). Nous nous sommes fixés une zone en dessous du coin d'un des repères. Cette caractérisation s'est faite en plusieurs étapes. En effet, la pointe étant sensible à la polarisation il était donc possible d'éclairer l'échantillon de deux manières différentes, parallèle ou perpendiculaire aux ailes métalliques de la nano-ouverture. De même il était possible de tourner l'ouverture de  $90^\circ$  pour chaque polarisation. Au bout du compte, cela nous faisait quatre différentes configurations expérimentales, donc 4 manipulations à effectuer. Celles-ci sont résumées sur la figure 3.33.

Pour l'excitation, nous utilisons le même laser accordable que précédemment. Le faisceau laser est injecté dans le microscope inversé qui supporte l'échantillon et la tête SNOM, comme représenté sur la figure 3.10. Le faisceau est modulé par un moulin à une

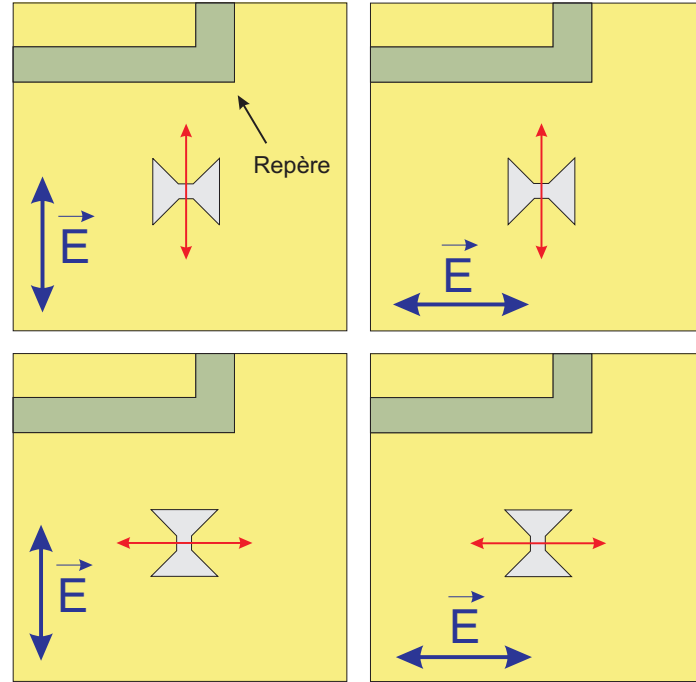


FIGURE 3.33 – Schéma représentant les différentes informations que l'antenne peut détecter sur ces échantillons GEMaC, la flèche bleue représente la polarisation incidente (à la longueur d'onde de 1550 nm), la flèche rouge représente la polarisation que l'ouverture est capable de détecter et le papillon représente la direction de l'ouverture.

fréquence de 1 KHz de manière à réaliser une détection synchrone du signal collecté par la pointe BNA. La focalisation du faisceau sur l'échantillon est assurée par un objectif ( $\times 20$ ,  $ON=0.40$ ).

Les images SNOM obtenues par la pointe BNA sont représentées sur la figure 3.34. Nous avons bien une atténuation de signal lorsque la polarisation incidente est perpendiculaire à la direction d'alignement des ailes métalliques de la BNA, ce qui confirme bien le caractère polarisant de celle-ci. Ce taux de polarisation (environ 1 :2,7 pour les deux orientations d'antenne) est assez faible par rapport à celui des cristaux photoniques du fait de la dépolarisation engendrée par la diffusion du faisceau laser incident par la couche semi-continue d'or rugueuse, et également au couplage pouvant exister entre le métal de l'échantillon et celui de la pointe. De plus, pour une même orientation d'antenne mais deux polarisations croisées nous observons deux cartographies complètement différentes (figure 3.34 c) et e)), ce qui confirme que l'on ne collecte pas la même information dans

les deux cas. Cette observation est également valable pour une même polarisation laser et deux orientations d'antenne différentes (figure 3.34 e) et g)). Ces résultats démontrent que la BNA ne collecte pas la même information sur cet échantillon plasmonique selon son orientation et la polarisation du laser excitateur. En revanche, contrairement aux images obtenues par microscopie en champ proche en mode collection [106] et perturbation [107], les images réalisées par le biais de la BNA ne présentent pas de confinements localisés de champ optique (pas de points chauds). Elles présentent des zones d'extinction très localisées (de largeurs inférieures à 100 nm) (cf. figure 3.34). Ces zones d'extinction traduisent soit une dépolarisation du champ optique sur des zones très localisées de la surface de l'échantillon, soit une suppression de la transmission optique due au couplage fort entre les deux structures résonantes (antirésonance du système global). Ces résultats montrent peut-être une des limites de la BNA en tant que sonde SNOM pour cartographier fidèlement le champ à la surface de nanostructures. Ces images peuvent en revanche donner de précieuses informations sur les résonances en jeu au niveau de la couche d'or, dans la mesure où l'on connaît parfaitement les propriétés et performances optiques réelles de la BNA expérimentale. Dans tous les cas, ces images confirment la très grande capacité de résolution de la BNA.

Nous observons également sur les images optiques la présence d'artefacts topographiques. En d'autres termes, les variations d'altitude de la pointe due à la topographie se retrouvent parfois dans le signal optique comme montré sur la figure 3.35. Si à certains endroits le signal optique est issu d'un artefact topographique, sur d'autres zones de l'échantillon, le signal optique est totalement décorrélié de la topographie. L'apparition du signal artefactuel est dû à la rugosité de la couche métallique sur l'apex de la pointe. Cette rugosité joue le rôle de nanosonde secondaire et couple du signal optique dans la pointe, parallèlement à la nano-antenne. Pour preuve, le signal topographique grossier de la figure 3.35 a) qui reflète la convolution entre le relief de l'échantillon et le sommet de la pointe, se retrouve à l'identique dans le signal artefactuel de la figure 3.35 b). Le

---



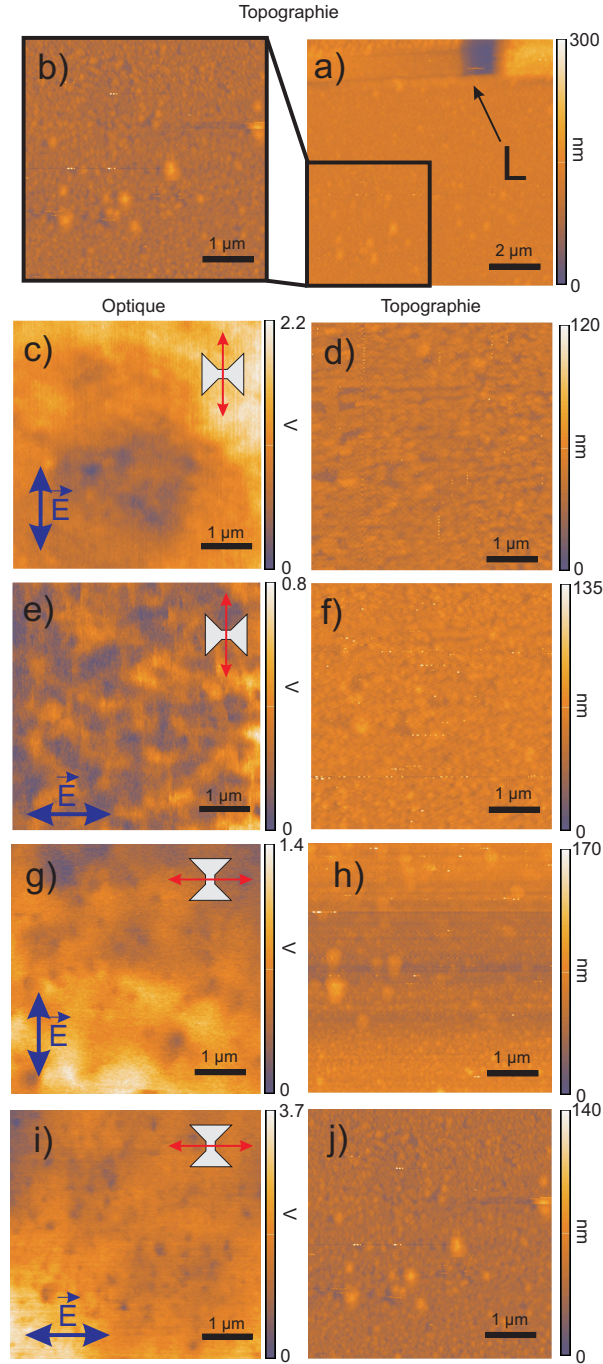


FIGURE 3.34 – Images optique et topographique de la zone de la structure plasmonique analysée par la pointe BNA, la flèche bleue représente la polarisation incidente (à la longueur d'onde de 1550 nm), la flèche rouge représente la direction d'analyse vectorielle de la BNA et le papillon représente la direction de l'ouverture.

niveau de ce signal est faible devant celui de la BNA. Ainsi, lorsque la BNA est parallèle au champ électrique local, le signal collecté est majoritairement optique. Lorsqu'elle devient orthogonale au champ local, elle ne transmet plus de signal et seul le signal optique artefactuel est visible dans la structure de l'image. Nous voyons sur la figure 3.35 b) en



haut à droite une zone d’extinction de la transmission optique à travers la BNA discutée précédemment. Sur une zone très localisée de l’échantillon, de 150 nm de largeur, la BNA n’est plus excitée et l’image reflète la topographie. Il s’agit peut être de la signature d’un point chaud optique polarisé orthogonalement à l’axe d’analyse vectorielle de la BNA ou à l’apparition d’un environnement métallique autour de la BNA qui annihile sa résonance.

Malheureusement, sur certaines images optiques obtenues, il s’avère qu’un reliquat du signal topographique apparaît dans l’image optique. En d’autres mots, les variations d’altitude de la pointe due à la topographie apparaissent parfois dans le signal optique comme montré sur la figure 3.35. Nous voyons sur cette figure qu’à certains endroits, à un minima dans l’image topographique correspond un minima dans le signal optique. Le plus surprenant vient du fait que ce comportement n’est vrai qu’à certains endroits, notre hypothèse est qu’à ces endroits le couplage entre l’échantillon métallique et la pointe est plus fort qu’à d’autres.

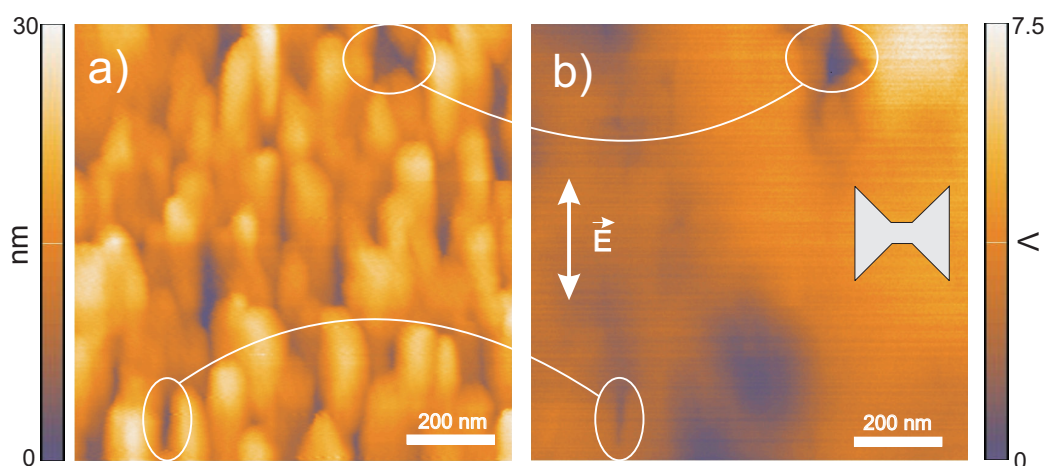


FIGURE 3.35 – Comparaison entre a) la topographie d’une partie de l’échantillon GEMaC et b) le signal optique correspondant.

La figure 3.36 reporte les profils topographiques et optiques des images de la figure 3.35 selon une même ligne. Nous constatons que les variations du signal optique sont corrélées ou non à la topographie de l’échantillon. Les variations purement optiques permettent

d'évaluer la capacité de résolution de la BNA à une valeur proche de  $\lambda/20$  (critère de la marche 10%-90% sur une variation locale monotone du signal optique (cf. figure 3.35 b)). Ceci confirme les valeurs obtenues dans le cadre de l'investigation de cristaux photoniques. La figure 3.37 reporte l'image optique de la zone de l'échantillon identique à celle inspectée précédemment (cf. figure 3.35) mais avec le champ incident polarisé orthogonalement à la BNA. Nous constatons que le niveau du signal collecté est 15 fois inférieur à celui du signal collecté auparavant (figure 3.35 b)). Le niveau de signal collecté par la BNA est de l'ordre de grandeur du signal artefactuel topographique induit par la rugosité de la pointe. Par ailleurs, cette étude nous a permis de mesurer une meilleure résolution de la part de la BNA. Elle est estimée ici à  $\lambda/77$  (cf. figure 3.37 b)).

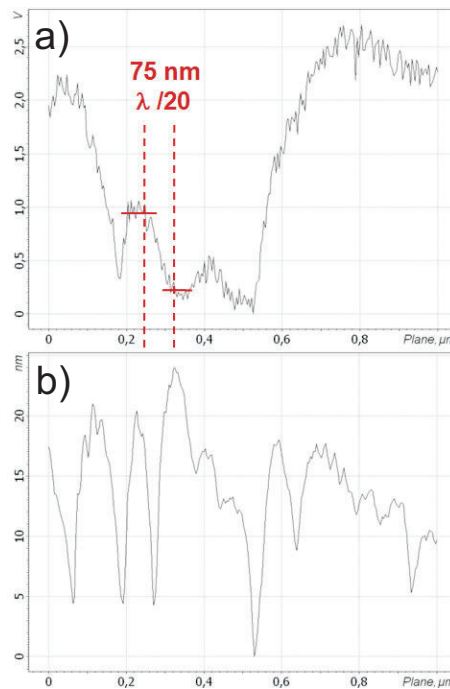


FIGURE 3.36 – Profils a) optique et b) topographique d'une même ligne de l'image optique figure 3.35.

Nous avons démontré dans ce troisième chapitre de manière expérimentale qu'une BNA en bout de pointe fibrée métallisée pour la microscopie en champ proche optique était capable, autour de la longueur d'onde de 1550 nm, de ne détecter qu'une seule composante du champ électrique optique à la surface d'un échantillon diélectrique de

---

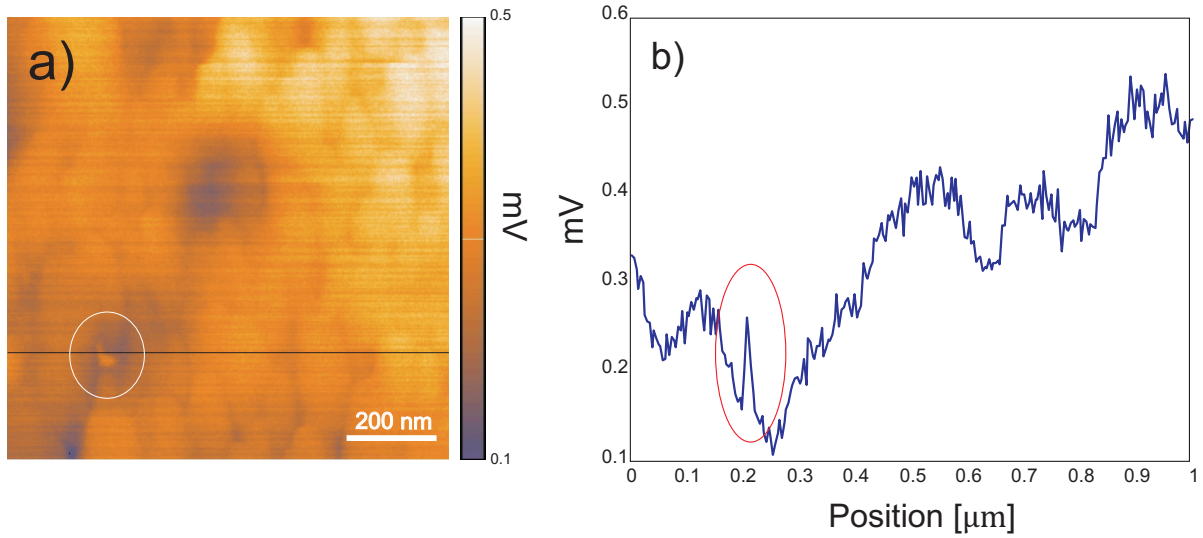


FIGURE 3.37 – a) Image optique d’une partie de l’échantillon GEMaC pour une polarisation perpendiculaire à la nano-ouverture et b) coupe transverse de cette image.

types réseaux et cristaux photoniques. En accord avec l’étude théorique (chapitre 2), l’information collectée est portée par la composante du champ électrique parallèle aux ailes métalliques de la BNA. La nano-antenne joue ainsi le rôle de nano-analyseur de champ électrique pour le SNOM et la nano-optique. Par ailleurs, nous avons prouvé que la BNA possédait une très bonne efficacité de collection (150 fois supérieure à celle et d’une nano-ouverture circulaire de 100 nm de diamètre) et une résolution de l’ordre de  $\lambda/50$ . L’ensemble des points du cahier-des-charges initial sont donc remplis, ce qui place la BNA comme un nano-collecteur SNOM très performant et offrant une information vectorielle précise et détaillée sur le champ proche électrique optique. Notons cependant que la BNA peut trouver quelques limites dans la cartographie optique de certaines structures plasmoniques présentant des résonances de facteur de qualité équivalentes à celles de la BNA. Nous avons également observé que la BNA peut perturber fortement les propriétés de résonateurs diélectriques à volumes modaux restreints (de type nano-cavités)



## Deuxième partie

BNAs comme interface entre un  
nano-émetteur et un mode de fibre  
optique

---



## 3.5 Introduction

\*

Dans cette partie nous présenterons l'utilisation du système décrit dans le chapitre précédent, c'est-à-dire la BNA en bout de pointe pour la microscopie en champ proche comme interface entre un NE/ fluorophore et un mode de fibre. Pour cela il sera étudié dans ce chapitre les interactions entre le NE et l'ouverture à géométrie papillon, notamment l'effet de celle-ci sur le temps de vie du fluorphore, ainsi que le couplage de l'énergie rayonnée collectée par la pointe au mode de la fibre optique. Notre objectif est de trouver le système le plus performant permettant de coupler un maximum de photons émis par le NE à un mode de fibre optique.





## Chapitre 4

# Etat de l'art des couplages entre un nano-émetteur et son milieu environnant

Dans ce chapitre nous ferons un état de l'art sur les modifications de l'émission de nano-émetteur (boîtes quantiques, molécules uniques) par son milieu environnant tels que : une interface plane, diélectrique ou métallique, une cavité diélectrique, métallique ou plasmonique, un cristal photonique, une nanoparticule métallique et une nano-antenne.

### 4.1 Le facteur de Purcell

Le contrôle de l'émission spontanée est la clef de futures applications en nano-optique et nano-photonique, ainsi qu'un sujet d'intérêts de physique fondamentale. D'après la règle d'or de Fermi, qui décrit les probabilités de transition par unité de temps d'un niveau d'énergie à un autre dans un système quantique [108], l'émission spontanée d'un nano-émetteur (NE) en optique est définie par la densité d'état local (LDOS : local density of state) [108]. Dans un milieu homogène, l'émission spontanée d'un émetteur est fixe et ne dépend que du moment de transition dipolaire (transition dipole moment : est un vecteur complexe décrivant l'interaction d'une onde électromagnétique incidente avec le système) de l'émetteur et de l'indice optique du milieu dans lequel il se trouve. Il est notamment connu que dans un environnement structuré à l'échelle sub-longueur d'onde, la LDOS peut être spatialement contrôlée [12, 109, 110]. Ceci a pour conséquence de modifier l'émission

---

spontanée d'émetteurs à sa proximité (l'augmenter ou la diminuer) selon la géométrie et la nature de cette structure.

Une des premières mises en évidence de ce phénomène fut faite par Edward Mills Purcell (1912-1997), qui dès 1946 proposa une équation et un facteur, connu aujourd'hui sous le nom de facteur de Purcell, permettant de quantifier l'augmentation ou la perte de l'émission spontanée d'un émetteur dans une cavité [111]. Pour une cavité, ce facteur est défini par l'équation (4.1) :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \quad (4.1)$$

Où  $Q$  est le facteur de qualité de la cavité,  $V$  le volume du mode de cavité,  $\lambda$  la longueur d'onde de résonance de la cavité et  $n$  l'indice optique à l'intérieur de la cavité.

Cette équation décrit optiquement l'effet du champ local à l'intérieur de la cavité sur l'émission de l'émetteur, c'est-à-dire comment le champ électromagnétique dans lequel se trouve le dipôle va modifier son émission.

En physique quantique, pour un NE sans perte intrinsèque, ce facteur correspond au rapport entre le taux de décroissance totale de l'émetteur  $\gamma$  (défini comme l'inverse du temps de vie de l'état excité de l'émetteur) à proximité de la structure sur ce même taux de décroissance sans la structure  $\gamma_0$  (équation (4.2)). Ce facteur de Purcell peut également être calculé de manière classique, il est défini comme le rapport de la puissance émise par un dipôle oscillant à proximité de la structure  $P_{tot}$  sur la puissance émise par celui-ci sans la structure  $P_0$  (équation (4.2)). Mais nous reviendrons sur cette approche classique plus en avant dans ce manuscrit.

$$F_p = \frac{\gamma}{\gamma_0} = \frac{P_{tot}}{P_0} \quad (4.2)$$


---

Où  $\gamma$  et  $\gamma_0$  représentent respectivement le taux de décroissance de l'émetteur avec et sans structure et  $P_{tot}$  et  $P_0$  la puissance émise par un dipôle oscillant avec et sans structure également.

Le facteur de Purcell est aujourd'hui couramment utilisé pour définir l'effet d'objets nano-structurés sur l'émission et le temps de vie de l'état excité de NE. Nous l'utiliserons également dans notre étude.

## 4.2 Influence d'une interface plane sur un NE optique

Une des premières études théoriques sur l'influence d'une surface au contact d'un NE sur l'émission de cet émetteur a été réalisée par Chance et al (1978) [12]. Leur étude consistait à approcher des dipôles électriques orientés parallèlement et perpendiculairement à une surface métallique plane et d'étudier les changements sur leur temps de vie et leurs rendements quantiques. Notamment l'approche de dipôles électriques près d'une surface d'argent d'indice  $n_{Ag} = 0.06 + 4.11*i$  (pour toutes les longueurs d'onde). Comme nous pouvons le voir sur la figure 4.1, le temps de vie de l'émetteur varie fortement en fonction de son orientation par rapport à la surface et de sa distance (en unité réduite ici) à celle-ci. Sachant que l'émission du dipôle est liée à son temps de vie on comprend que celle-ci variera également en fonction de ces critères. Le même genre de comportements à proximité de matériaux diélectriques et métalliques sont décrits dans plusieurs articles [112, 113, 114, 115]. De plus en observant les courbes relatives au rendement quantique de ces émetteurs (rapport entre l'énergie rayonnée en champ lointain et celle totale rayonnée par le dipôle), nous voyons que ce rendement chute à l'approche de la surface, de manière plus brutale pour le dipôle parallèle à la surface que celui perpendiculaire. Cette chute s'explique par une absorption accrue de l'énergie émise par le dipôle dans le métal pour des distances faibles, ce comportement est caractéristique d'un phénomène de quenching

---

(dissipation d'énergie dans un matériau).

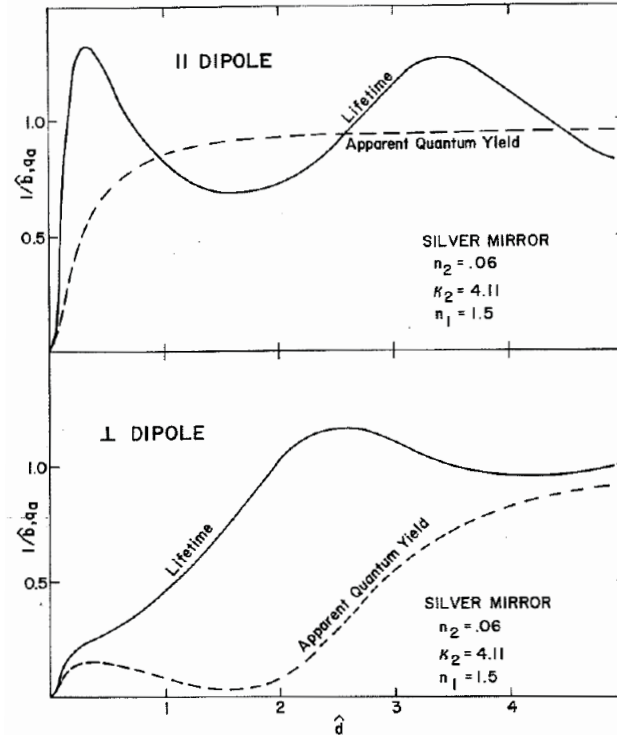


FIGURE 4.1 – Temps de vie et rendement quantique d'un dipôle parallèle (haut) et perpendiculaire (bas) à une surface d'argent, en fonction de la distance dipôle-surface.  $\hat{b}$  représente le facteur de Purcell des dipôles,  $q_a$  leurs rendements quantiques,  $\hat{d}=2\pi n_1 d/\lambda$  et la distance en unités réduites à la surface, avec  $d$  la distance dipôle-surface et  $\lambda$  la longueur d'onde.  $n_2$  et  $k_2$  sont les parties réelle et imaginaire de l'indice optique de l'argent et  $n_1$  est l'indice optique dans lequel sont placés les dipôles [12].

### 4.3 Influence d'une cavité sur un NE optique

Plus récemment, les opticiens se sont intéressés à l'influence des cavités sur l'émission des NEs [116, 117, 118, 119, 120, 121, 122, 123, 124, 125]. C'est le cas de l'étude de Kleppner (1981) [13], qui étudia de manière théorique l'émission spontanée d'atomes à l'intérieur d'une cavité, en fonction des dimensions de celle-ci. Il démontra que l'émission spontanée pouvait être inhibée ou au contraire augmentée en fonction du rapport entre la fréquence  $\nu$  d'émission d'un NE à l'intérieur d'une cavité résonante et la fréquence  $\nu_0$  de résonance de la cavité. Il est montré sur la figure 4.2 les changements dans l'émission spontanée

d'un émetteur à l'intérieur d'une cavité en fonction du rapport  $\nu/\nu_0$ . Nous voyons que pour certaines valeurs du rapport  $\nu/\nu_0$  l'émission spontanée augmente jusqu'à un facteur 3 ou, au contraire, diminue à un facteur 0.6. Cela s'explique par le fait qu'en dehors de la résonance le facteur de qualité de la cavité décroît fortement, ce qui provoque une chute du facteur de Purcell et donc de l'émission spontanée ou, au contraire, à la résonance le facteur de qualité augmente, ainsi que le facteur de Purcell d'où une augmentation de l'émission spontanée. A noter que sur la figure 4.2, l'étude est faite pour des polarisations TE (coubre foncée) et TM (courbe claire).

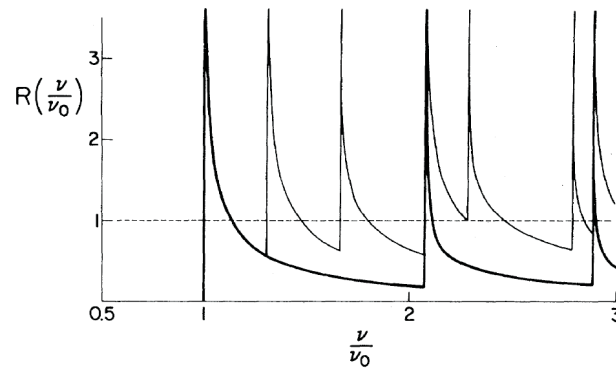


FIGURE 4.2 – Emission spontanée d'un atome dans une cavité en fonction du rapport entre la fréquence d'émission de l'atome  $\nu_0$  et la fréquence de résonance de la cavité  $\nu$ . La courbe foncée correspond à une polarisation TE et la courbe claire à une polarisation TM [13].

## 4.4 Influence d'une cristal photonique sur un NE optique

Un autre moyen d'influencer l'émission d'un émetteur, est de le coupler à un cristal photonique [100, 126, 127, 128], c'est ce qu'ont démontré Lodahl et al (2004) [14], Ils décrivent dans cet article l'influence du paramètre de maille d'un cristal photonique 2D en dioxyde de titane (figure 4.3) sur le temps de vie de boîtes quantiques (BQs) (CdSe, band gap = 1.74 eV c'est à dire  $\lambda \simeq 712$  nm) insérés à l'intérieur même du matériau. Il est reporté sur la figure 4.4 les temps de vie de ces BQs pour trois paramètres de maille différents.

Il apparait qu'il existe une différence de plusieurs nanosecondes dans ces temps de vie, le minimum étant d'environ 10 ns pour le paramètre égal à 420 nm et 20 ns pour celui de 500 nm. Il a été prouvé dans cet article que le temps de vie de ces BQs pouvait être divisé par deux en changeant le paramètre de la maille d'un cristal photonique.

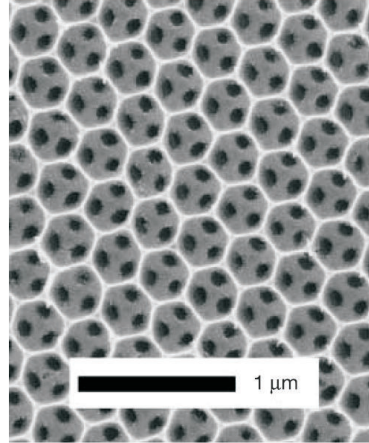


FIGURE 4.3 – Image MEB du cristal photonique [14].

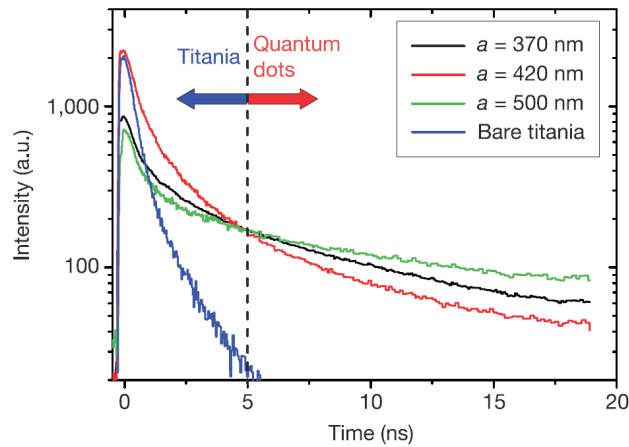


FIGURE 4.4 – Temps de vie (partie droite) des états excités des BQs placées à l'intérieur du cristal photonique [14].

Malheureusement l'ensemble de ces cavités n'ont jamais été capables d'augmenter le facteur de Purcell de plus de quelques dizaines, le record étant détenu à notre connaissance par Altug et al [129] pour une nano-cavité à cristal photonique 2D à maille carrée, fabriqué dans de l'InP, ils obtinrent un facteur de 75.

Passons maintenant à un autre type de structure, pouvant également influencer l'émission des NE, mais faisant intervenir des parties métalliques qui pourront engendrer des pertes.

## 4.5 Influence d'une nano-structure métallique sur un NE optique

C'est le cas de l'étude d'Enderlein (2002) [15], qui proposa une étude théorique d'une nano-cavité métallique constituée d'une nano-capsule sphérique en argent dans laquelle était enfermé un émetteur unique (dipôle électrique) en son centre (figure 4.5). La méthode de calcul utilisée dans cette étude était entièrement analytique. Il démontra que le taux de décroissance radiatif, défini par le rapport de la puissance émise par le dipôle rayonnée en champ lointain en présence de la sphère métallique, par celui sans la sphère, pouvait être fortement modifié et augmenté en fonction des paramètres de la nano-capsule, notamment son rayon et son épaisseur de métal et ceci malgré le caractère dissipatif du métal (figure 4.6). Nous voyons sur cette figure qu'il existe un maximum pour le taux de décroissance de ce dipôle émettant à  $\lambda=670$  nm, pour un rayon intérieur de sphère de 30 nm et une épaisseur de 1 nm. Lorsque l'épaisseur de métal augmente, nous observons alors une chute du taux de décroissance due à l'absorption à par le métal. Cet article nous apprend qu'une nanostructure métallique peut être utilisée pour augmenter l'émission spontanée d'un NE dipolaire mais que la nature absorbante du métal peut être un aspect handicapant pour de telles applications.

## 4.6 Influence d'une structure plasmonique sur un NE optique

Une idée a alors fait son chemin dans la communauté des nano-opticiens, celle d'utiliser des structures plasmoniques [130, 131, 132, 133, 134, 135, 136], pour modifier l'émission de

---

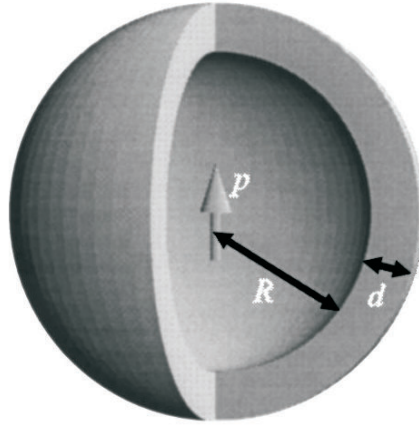


FIGURE 4.5 – Schéma de la nano-cavité métallique sphérique, la flèche représente le dipôle, le métal étant de l'argent et le milieu intérieur possède un indice optique de  $n = 1,5$  [15].

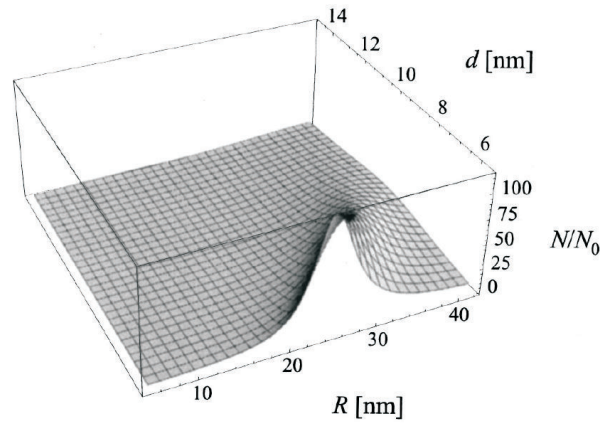


FIGURE 4.6 – Rapport de l'énergie rayonnée en champ lointain par le dipôle en présence de la cavité ( $N$ ) sur celle sans la cavité ( $N_0$ ), en fonction du rayon ( $R$ ) et de l'épaisseur ( $d$ ) de la sphère métallique [15].

NE [16, 137]. Ces cavités ont, en effet, deux principaux avantages : elles ont tout d'abord un spectre de résonance assez large, pouvant ainsi bien s'accorder sur le spectre d'émission des NEs de type BQ et molécule unique, qui est assez large lui aussi. De plus, elles ont un volume de mode beaucoup plus faible que celui des cavités présentées précédemment, ce qui contribue à augmenter fortement le facteur de Purcell même pour un facteur de qualité faible (équation (4.1)).

C'est le type d'étude menée par Kuttge et al (2010) [16], qui fabriquent un nano-



résonateur plasmonique montré sur la figure 4.7, constitué d'un empilement de différentes couches de chrome, d'argent et de verre. Ils démontrèrent notamment qu'un mode plasmonique pouvait exister à l'intérieur de la couche de verre comme montré sur la figure 4.8 pour différentes excitations : par cathodoluminescence, par un dipôle et par une onde plane polarisée TE (parallèlement à l'axe des cylindres), il a été trouvé une résonance à  $\lambda = 660$  nm. Expérimentalement il fut obtenu pour cette structure un facteur de qualité de 16 ce qui est assez faible. Par contre, le volume du mode a été estimé à  $0.00013\lambda^3$ , ce qui donne un facteur de Purcell de 900. Nous voyons dès lors l'avantage d'utiliser de telles structures plasmoniques dans le but d'augmenter l'émission spontanée de NE [138].

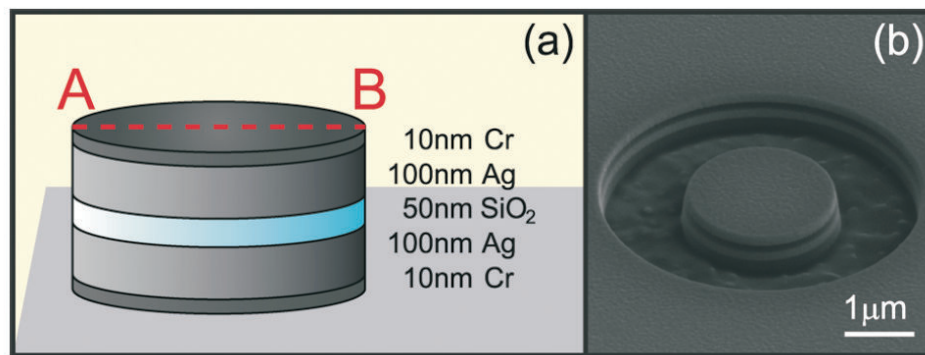


FIGURE 4.7 – (a) Schéma de la cavité proposée par Kuttge et al, (b) image MEB de cette cavité [16].

## 4.7 Influence d'une nano-particule sur un NE optique

La modification de l'émission d'un émetteur, comme nous l'avons vu précédemment, peut avoir lieu au contact de surface aussi bien métallique que diélectrique. Dans l'article de Carminati et al (2006) [17], une étude analytique est faite sur l'influence d'une nano-particule métallique sur l'émission spontanée d'une molécule unique. Notamment l'effet de la distance particule-molécule sur l'augmentation du taux de décroissance radiatif (émis en champ lointain) et non radiatif (dissipé par la structure) de cette molécule. Il est montré sur la figure 4.9 ces taux de décroissance pour un dipôle orienté selon Z à proximité

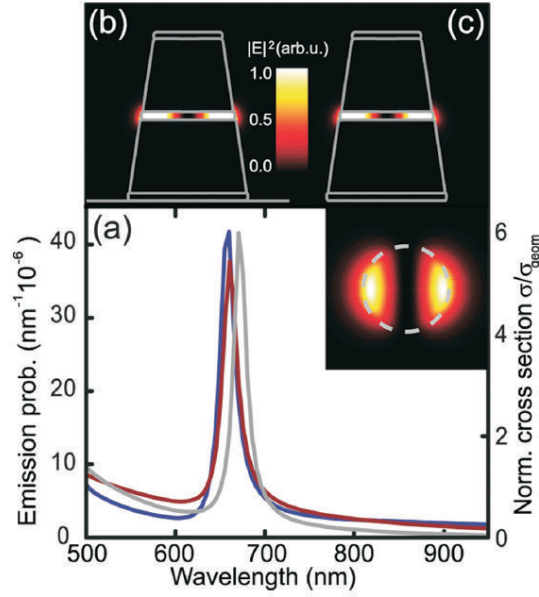


FIGURE 4.8 – (a) Spectre calculé de résonance de la cavité pour une excitation par cathodoluminescence (bleu), lumière polarisée TE (parallèlement à l'axe des cylindres) avec une couche d'accroche de chrome (rouge) et sans chrome (grise). (b) et (c) l'intensité électrique pour une excitation par un dipôle dans la cavité et par une plane polarisée TE respectivement [16].

d'une particule d'argent de 5 nm de rayon. Il a été démontré dans cette étude que le taux de décroissance radiatif était proportionnel à la distance à la puissance -3. Alors que le taux de décroissance non-radiatif était proportionnel, en accord avec le transfert d'énergie de type Förster (un des mécanismes du quenching), à la distance à la puissance -6 (figure 4.9). Il était également décrit dans cet article comment ces paramètres étaient dépendants de la longueur d'onde d'émission du dipôle, notamment de la longueur d'onde de résonance plasmonique de la particule d'argent, les taux de décroissance étaient en l'occurrence beaucoup plus élevés à cette longueur d'onde de résonance comme montré sur la figure 4.9. Ce travail témoigne de l'influence que peuvent avoir des particules métalliques, plasmoniques, d'échelles nanométriques sur l'émission de NE.

Une application expérimentale de ce phénomène est décrite dans les travaux de Anger et al (2006) [18], qui placèrent une nano-particule d'or en bout de pointe de microscope en champ proche (figure 4.10 a)). Ils utilisèrent ce système de manière à détecter des

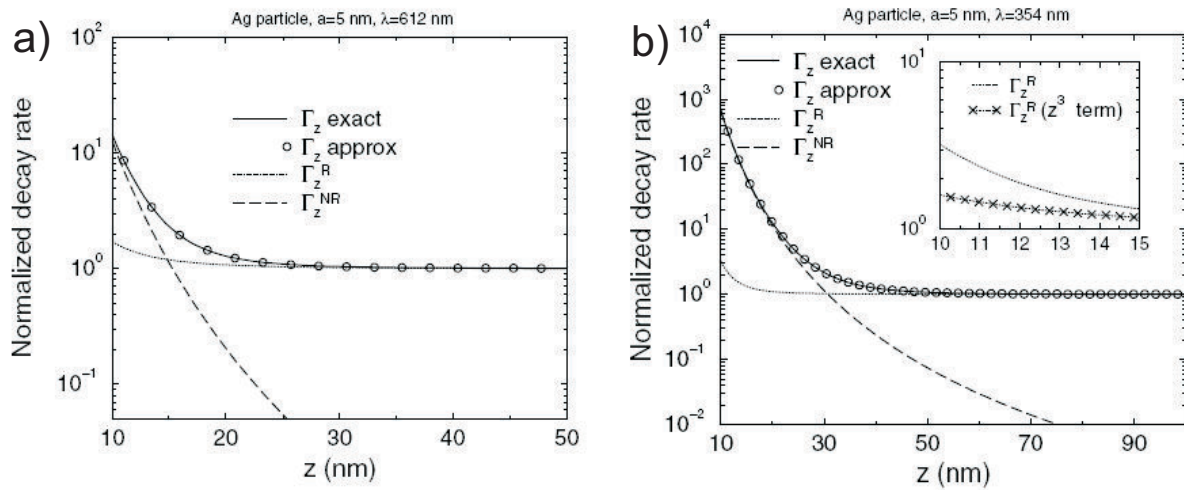


FIGURE 4.9 – Taux de décroissance total  $\Gamma$ , radiatif  $\Gamma^R$ , non radiatif  $\Gamma^{NR}$  pour un dipôle perpendiculaire à une nano-particule d'argent à la longueur d'onde de 612 nm (hors résonance) (a) et 354 nm (à la résonance) (b) [17].

molécules uniques déposées sur un substrat et étudier leurs propriétés de fluorescence, notamment son augmentation et son absorption par le métal (quenching). Comme nous pouvons le voir sur la figure 4.10 b), nous observons une augmentation de la fluorescence rayonnée en champ lointain, lorsque la distance nano-particule d'or-molécule diminue. Puis, pour une distance limite (5-10 nm), il apparait que l'absorption par le métal prend le pas sur le rayonnement champ lointain (figure 4.10 b)).

La littérature abonde d'études sur l'influence de nano-particules anisi que de nano-antennes dipolaires sur l'émission de NE [4, 5, 57, 63, 21, 19, 20, 34, 139, 140, 141, 142, 143, 144, 145, 146, 147, 148, 64, 149]. C'est le cas de celle proposée par Mohammadi et al (2008) [19] qui décrivent théoriquement l'effet de nano-bâtonnets et de dimères métalliques sur le facteur de Purcell en fonction des dimensions géométriques de ceux-ci. Il est montré figure 4.11 les réponses spectrales, le facteur de Purcell et l'efficacité de nano-antennes dipolaires en or, excitées par un dipôle placé dans leur entrefer, en fonction de leurs dimensions. Il a été démontré dans cet article que le facteur de Purcell était maximum pour la longueur d'onde de résonance plasmonique de chaque nano-antennes, ce sera donc des éléments importants à prendre en compte lors de notre étude. De plus,

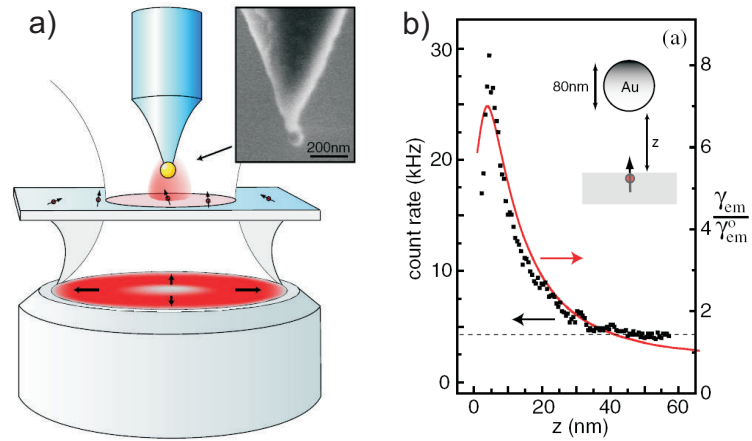


FIGURE 4.10 – (Gauche) Schéma de la nano-particule d’or en bout de pointe champ proche au dessus d’un substrat contenant des molécules uniques, (droite) nombre de coups par seconde et augmentation du taux de fluorescence collectée en champ lointain en fonction de la distance particule-molécule [18].

certaines nano-antennes semblent posséder un meilleur rendement que d’autres (proche de 90 %). Il apparait alors que les nanostructures dipolaires résonantes sont de très bonnes candidates pour augmenter l’émission spontanée de NE.

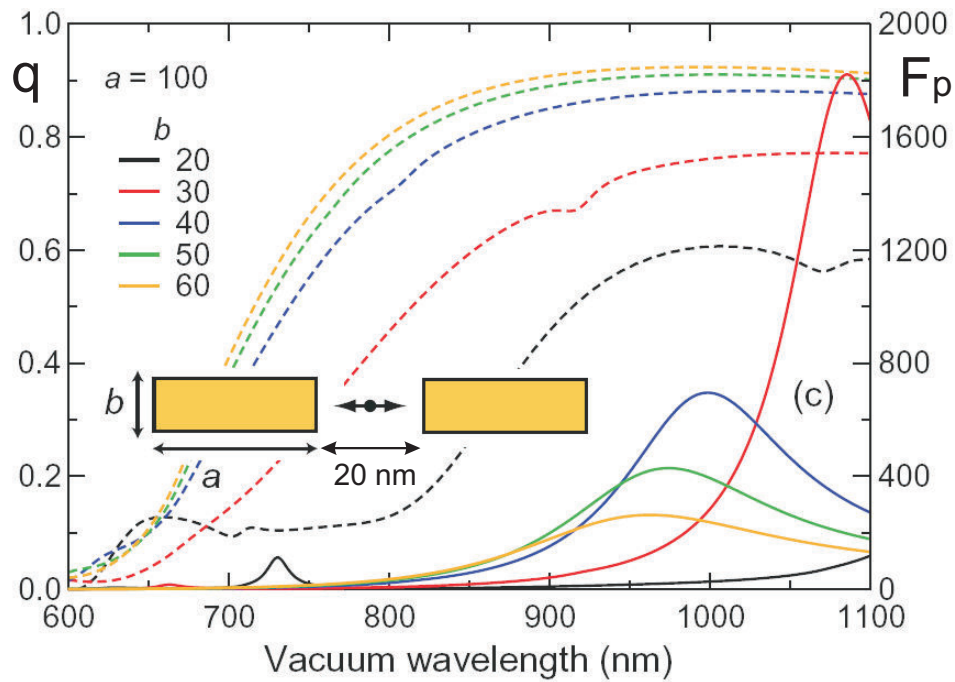


FIGURE 4.11 – Rendement quantique  $q$  et facteur de Purcell  $F_p$ , pour une nano-antenne dipolaire en or, en fonction de la longueur d’onde et des dimensions de celle-ci [19].

Comme nous l'avons vu précédemment dans ce manuscrit, les antennes dipolaires regroupent plusieurs types de nano-antennes; l'une d'elles est la nano-antenne à géométrie papillon qui a également fait l'objet de recherches, sur ses capacités à augmenter le facteur de Purcell. Giannini et al (2008) [20] ont notamment étudié l'émission d'une molécule unique couplée à un trimère constitué d'une nano-antenne papillon et d'une nano-particule cylindrique (figure 4.12). Il est montré sur cette figure la réponse spectrale d'une telle structure excitée par une onde plane polarisée TM (courbe pleine), pour un triangle seul (courbe pointillés rouges) et pour un cylindre seul (courbe pointillés bleus), ainsi que les répartitions d'intensité pour deux longueurs d'onde de résonance (390 et 334 nm). De ces résultats ils ont montré les fortes possibilités d'augmentation du taux de décroissance du système composé des deux triangles et du cylindre pour un dipôle équidistant d'un des triangles et du cylindre (courbe rouge figure 4.13). Comme nous le voyons, pour un dipôle électrique placé dans l'un des entrefers, nous observons une variation des taux de décroissance radiatif, non-radiatif et du rendement quantique lorsque l'on fait varier l'angle entre la direction du dipôle et l'axe de l'entrefer. Ces résultats démontrent l'influence des structures à géométrie papillon sur les propriétés des nano-émetteurs.

Mais c'est surtout Farahani et al (2005) [21] qui ont prouvé la capacité d'une nano-antenne à géométrie papillon à augmenter le facteur de Purcell et donc à réduire le temps de vie de l'état excité d'une BQ (puisque'ils sont inversement proportionnels). Ils placèrent en bout d'une pointe AFM une nano-antenne papillon (image MEB sur la figure 4.14 a) et b)), et l'ont utilisée pour détecter une BQ déposée sur un substrat. Comme le montre la figure 4.15, durant le balayage de cette BQ par la nano-antenne en bout de pointe, il a bien été observé une réduction du temps de vie de son état excité lorsque la nano-antenne était à proximité de celle-ci. Ce qui confirme l'influence de l'antenne papillon sur le comportement de la BQ.

Intéressons nous maintenant au couplage entre l'émission par un NE et le mode d'une

---

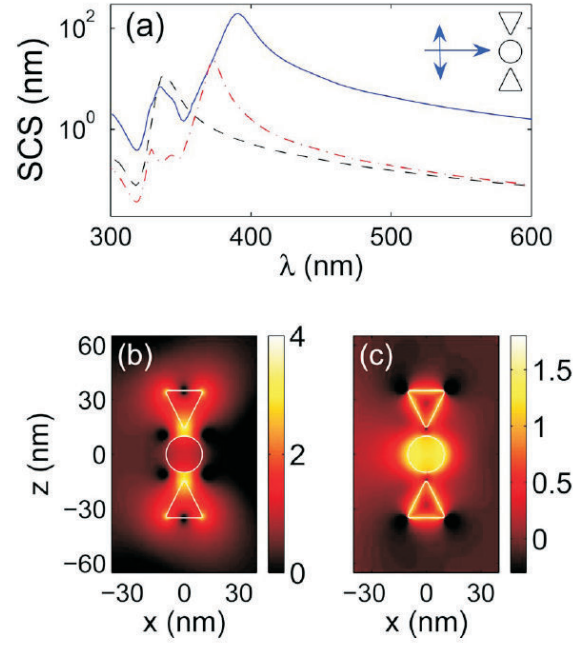


FIGURE 4.12 – (a) réponse spectrale pour une excitation TM de la structure constituée de deux triangles de 20 nm de base placés à 5 nm d'un cylindre de 20 nm de diamètre, le tout d'une épaisseur de 20 nm. (b) et (c) respectivement l'intensité électrique champ proche en base log10 à la longueur d'onde de 390 nm et 334 nm [20].

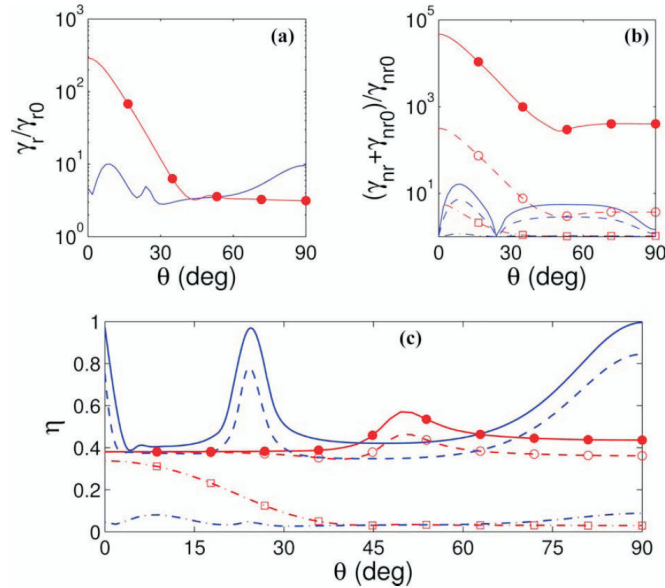


FIGURE 4.13 – Pour la courbe rouge : (a) augmentation du taux radiatif, (b) non-radiatif et (c) le rendement quantique d'un émetteur placé au centre d'un des espaces triangle-cylindre, à la longueur d'onde de résonance (390 nm), en fonction de l'angle du dipôle par rapport à l'axe de l'entrefer [20].

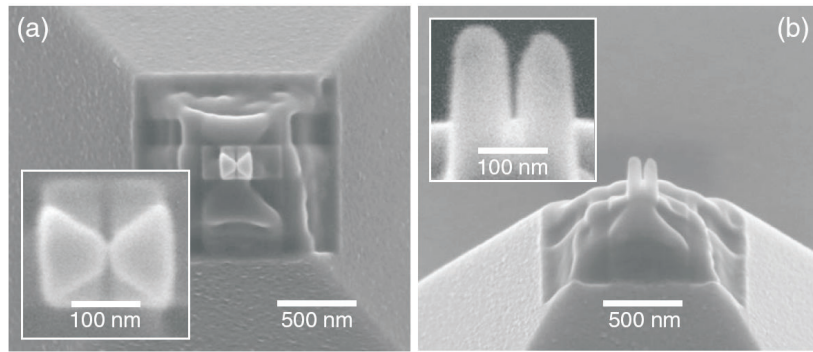


FIGURE 4.14 – Images MEB de la nano-antenne papillon en bout de pointe AFM [21].

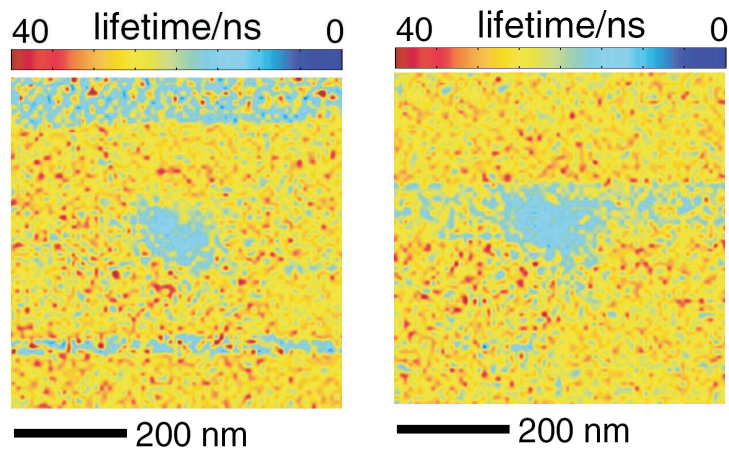


FIGURE 4.15 – Temps de vie de l'état excité de la BQ, en fonction de la position de la nano-antenne papillon, pour une polarisation parallèle (a) et perpendiculaire (b) à la nano-antenne [21].

fibres optiques.

## 4.8 Couplage entre l'émission d'un NE et un mode de fibre optique

Lorsque l'on regarde dans la littérature, il existe quelques études relatant de tels couplages [22, 23, 120, 36, 150, 151, 152], tout particulièrement dans la recherche du guidage de photons uniques via une fibre optique.

C'est le cas de l'étude de Muller et al (2009) [22], qui couplèrent une microcavité (de



réflectivité supérieur à 99.7 %) composée d'une part, d'un miroir en bout de fibre optique fait d'une succession de couches de dioxyde de titane et de verre et d'autre part d'un miroir sur un substrat fait d'une succession de couches d'AlAs et GaAs. Sur ce dernier étaient déposées des BQs (InAs :  $\lambda = 880-980$  nm) et intégrées dans une couche de GaAs (figure 4.16). L'excitation se faisait à une température de 7 K par la fibre optique via le mode de fibre et le signal émis par cette boîte était également collecté par le mode de fibre (figure 4.16). Ce système leur permis de coupler 10 % de l'énergie émise par la BQ au mode de fibre tout en augmentant légèrement le facteur de Purcell de celles-ci.

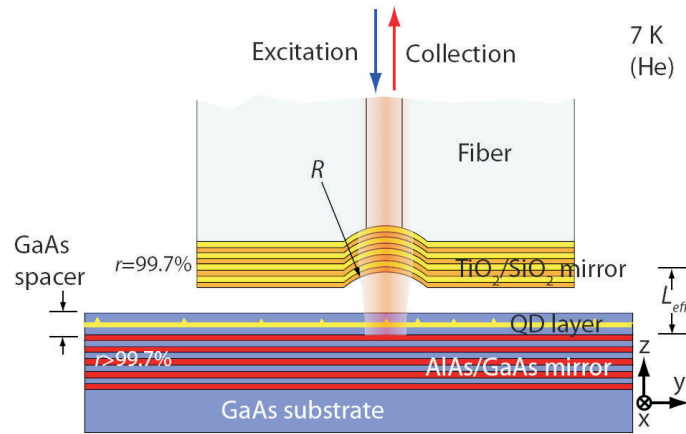


FIGURE 4.16 – Schéma de la micro-cavité en bout de fibre optique pour le couplage de BQ au mode de fibre optique. La distance entre l'échantillon et le miroir est contrôlée par un tube piézoélectrique, de manière à optimiser le rôle de la cavité. Pour plus d'efficacité, la cavité est refroidie à 7K [22].

Une autre étude, plus récente celle-ci, faite par Davanço et al (2011) [23], propose un système constitué d'un guide d'onde suspendu en GaAs jouant le rôle de coupleur (figure 4.17 b)) et une fibre optique (de  $1 \mu\text{m}$  de diamètre) en contact avec ce coupleur, dans le but de transmettre efficacement l'émission d'une BQ (InAs :  $\lambda = 990$  nm) insérée dans le guide à un mode de fibre optique (figure 4.17 a)). La technique utilisée pour le transfert des photons du guide à la fibre optique utilise un couplage par le champ évanescent, qui travaille en dessous de 9 K. Ce système ne leur permettait pas d'augmenter le facteur de Purcell de cette BQ, mais leur permis de guider expérimentalement un peu plus de 6 %



de l'énergie émise par le NE à la fibre optique.

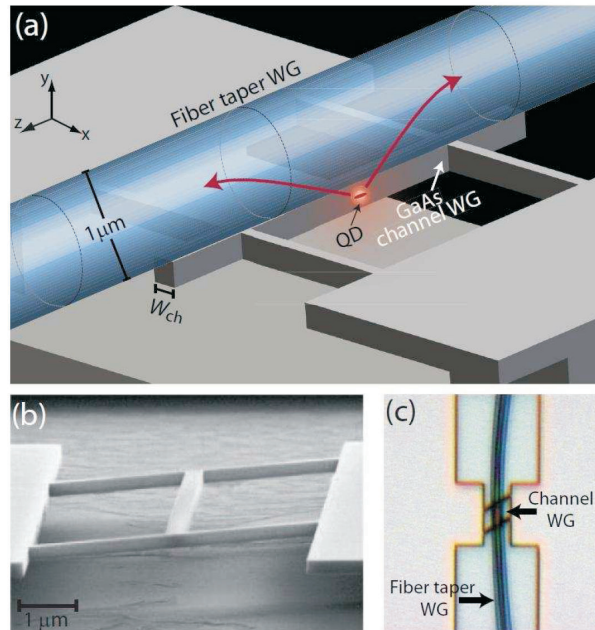


FIGURE 4.17 – (a) Schéma du coupleur entre la BQ et la fibre optique, (b) image MEB de sa réalisation, (c) image optique de la fibre posée sur le coupleur [23].

A ce jour et à notre connaissance, aucune étude de couplage entre une information émise par un NE et un mode de fibre optique, faisant intervenir une nano-antenne augmentant significativement son émission via le facteur de Purcell, n'a été effectuée. Nous proposons dans cette partie d'étudier le système présenté précédemment, à savoir le couplage entre une BNA, suivie d'une antenne cornet et d'une fibre optique monomode à la longueur d'onde de  $1550\text{ nm}$ , comme un outil efficace pour collecter l'information délivrée par un NE de type BQ.



## Chapitre 5

# Etude théorique d'une BNA comme coupleur champ proche entre un NE et un mode de fibre optique

Dans ce chapitre, il sera décrit dans une première partie, les grandeurs caractéristiques d'un NE du point de vue quantique ainsi que l'approche qui peut en être faite par des valeurs classiques. Dans une deuxième partie il sera expliqué comment théoriquement les valeurs classiques nécessaires à la compréhension de ces phénomènes quantiques seront obtenues. Et enfin, une étude théorique du couplage entre notre pointe BNA et un NE en champ proche sera présentée.

### 5.1 Cahier des charges

Le cahier des charges que nous nous étions fixé pour cette étude était le suivant : (a) concevoir un système capable de collecter et d'amplifier en champ proche le signal émis par un NE à la longueur d'onde télécom de 1550 nm. (b) Guider ce signal jusqu'à une fibre optique monomode à cette longueur d'onde (SMF-28e) et (c) le coupler au mode "fondamental" de celle-ci. Pour cela nous nous sommes donc appuyés sur une partie du travail qui avait été effectué précédemment, en l'occurrence la recherche de la résonance de l'ouverture papillon à la longueur d'onde télécom. Il nous restait alors à étudier en champ proche, l'influence de notre BNA sur le facteur de Purcell, l'augmentation du taux de fluorescence, le pourcentage de l'énergie collectée par la pointe par rapport à celle

---

perdue (rendement du système) et enfin quelle partie de cette énergie était transmise au mode de fibre.

Ce travail se décompose en deux parties, une de théorie générale, essentielle à la compréhension des phénomènes mis en jeu dans les interactions entre NE et nanostructures optiques et une deuxième partie sur les simulations effectuées sur la pointe BNA à proximité d'un substrat contenant un nano-émetteur.

## 5.2 Etude théorique

Pour cette étude théorique, nous avons dû nous intéresser dans un premier temps, aux propriétés physiques des NE. Ces propriétés sont principalement quantiques, elles sont présentées ci-dessous avec le plus de rigueur et de justesse possibles.

### 5.2.1 Etude quantique

#### Taux de décroissance

Un NE de type BQ ou molécule unique peut être assimilé/approximé par un système à deux niveaux d'énergie [149] (figure 5.1), avec un niveau dit fondamental et un niveau excité. Lorsqu'un électron est excité du niveau fondamental au niveau excité, par un laser par exemple, il va pouvoir se désexciter de plusieurs manières pour revenir à son niveau fondamental. Une est radiative, par l'émission de photons rayonnés en champ lointain (correspondant à un taux de décroissance radiatif  $\gamma_r$ ), une autre est non radiative, absorbée par le milieu environnant (correspondant à un taux de décroissance non-radiatif  $\gamma_{nr}$ ) et la troisième perdue intrinsèquement par le NE par vibration par exemple (correspondant à un taux de décroissance intrinsèque  $\gamma_i$ ). Ces désexcitations sont représentées figure 5.1 et leurs taux de décroissance sont reliés par l'équation (5.1). Le taux de décroissance total  $\gamma$  caractérise la décroissance exponentielle de la probabilité d'émission d'un photon lors d'une émission spontanée.

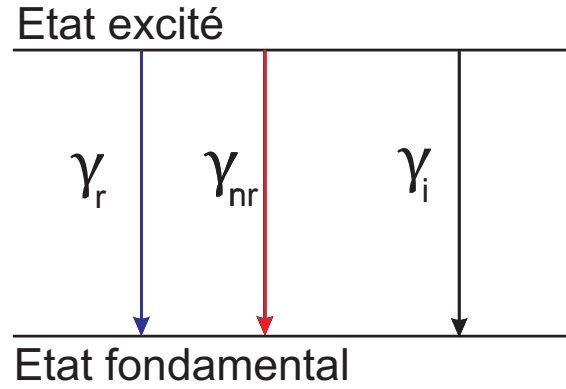


FIGURE 5.1 – Représentation schématique des taux de décroissance à l'intérieur d'un système à deux niveaux d'énergie.

$$\gamma = \gamma_r + \gamma_{nr} + \gamma_i \quad (5.1)$$

Cette équation devient alors pour un émetteur dans un milieu homogène non-absorbant (5.2).

$$\gamma_{tot0} = \gamma_0 + \gamma_i \quad (5.2)$$

Où  $\gamma_{tot0}$  est le taux de décroissance total de l'émetteur dans le milieu homogène non-absorbant et  $\gamma_0$  le taux de décroissance radiatif de cet émetteur dans le même milieu. A noter que  $\gamma_i$  est constant quelque soit le milieu entourant l'émetteur et que  $\gamma_{nr}$  est nul dans le cas d'un milieu non absorbant.

### Rendement quantique

On définit alors les rendements quantiques de l'émetteur, c'est-à-dire le rapport du taux de décroissance radiatif sur le taux de décroissance total, pour un émetteur dans un système homogène non absorbant ( $\eta_i$ ) par l'équation (5.3) et pour un émetteur dans un milieu quelconque (q) par l'équation (5.4).

$$\eta_i = \frac{\gamma_0}{\gamma_{tot0}} = \frac{\gamma_0}{\gamma_0 + \gamma_i} \quad (5.3)$$

$$q = \frac{\gamma_r}{\gamma} = \frac{\gamma_r}{\gamma_r + \gamma_{nr} + \gamma_i} \quad (5.4)$$

Où  $\eta_i$  et  $q$  sont respectivement les rendements quantiques intrinsèque et général de l'émetteur. A noter que dans un milieu homogène et non-absorbant  $\eta_i=q$  du fait que  $\gamma_r=\gamma_0$  et  $\gamma_{nr} = 0$ .

### Temps de vie

De même nous pouvons définir le temps de vie de l'état excité du NE comme étant le temps après excitation de l'émetteur pour que la probabilité d'une émission spontanée soit égale à  $1/e$  du maximum de la propabilité d'émission. Dans un milieu homogène non-absorbant celui-ci est défini par l'équation (5.5) et dans un milieu quelconque par l'équation (5.6).

$$\tau_0 = \frac{1}{\gamma_{tot0}} = \frac{1}{\gamma_0 + \gamma_i} \quad (5.5)$$

$$\tau = \frac{1}{\gamma} = \frac{1}{\gamma_r + \gamma_{nr} + \gamma_i} \quad (5.6)$$

Où  $\tau_0$  et  $\tau$  sont respectivement les temps de vie de l'état excité dans un milieu homogène non-absorbant et dans un milieu quelconque.

Dans le but de pouvoir comparer l'émission spontanée et la fluorescence d'un même émetteur à proximité de différentes structures nous devons définir de nouvelles valeurs. Il s'agit de l'augmentation du taux de décroissance radiatif ( $\Gamma_r$ ) défini dans l'équation (5.7) et de l'augmentation du taux de décroissance total ( $\Gamma_{tot}$ ) équivalent au facteur de Purcell  $F_p$  dans le cas d'une cavité définie par l'équation (5.8).  $\Gamma_{tot}$  représente aussi la réduction du temps de vie de l'état excité du NE entre le cas avec structure résonante et celui du milieu homogène dans lequel se trouve l'émetteur.

---

$$\Gamma_r = \frac{\gamma_r}{\gamma_0} \quad (5.7)$$

$$\Gamma_{tot} = \frac{\gamma}{\gamma_{tot0}} \quad (5.8)$$

### Taux de fluorescence

Toutes ces grandeurs étant définies, parlons maintenant de l'augmentation du taux de fluorescence. Ce terme correspond en général au gain de puissance en champ lointain émis par deux NE identiques dans deux systèmes différents. Ce sera donc le rapport entre deux grandeurs. Cette augmentation de la fluorescence peut prendre deux formes différentes selon que l'émetteur est en mode saturé ou non saturé. L'émission de fluorescence d'un émetteur dans un système donné (c'est-à-dire avec un rendement quantique fixe) ne dépendra que de l'intensité du champ électromagnétique exciteur (excitation laser ici). Sa fluorescence augmentera alors de manière linéaire avec l'intensité électrique vue par l'émetteur jusqu'à une valeur critique de celle-ci ( $I_c$ ) à partir de laquelle la fluorescence reste constante. Nous définissons le mode d'excitation saturé pour une intensité électrique à l'endroit du dipôle supérieur à  $I_c$  et le mode d'excitation non saturé pour une intensité électrique à l'endroit du dipôle inférieur à  $I_c$ .

### Augmentation du taux de fluorescence pour un système saturé :

Lorsque l'excitation de l'émetteur se fait de manière saturée, l'augmentation du taux de fluorescence ( $\eta_F$ ) ne se calcule que via l'augmentation du taux de décroissance radiatif  $\Gamma_r$ , c'est-à-dire suivant l'équation (5.9) [149, 153]. Cela s'explique par le fait que dans ce mode d'excitation, dès qu'une émission spontanée a lieu, l'émetteur quantique va ensuite être capable immédiatement d'absorber un photon de pompe et donc faire passer un électron du niveau fondamental au niveau excité (figure 5.1), la fluorescence (émission en champ lointain) ne dépend alors plus que du taux de décroissance radiatif de l'émetteur.

L'augmentation de la fluorescence d'un même émetteur dans deux systèmes différents sera alors le rapport entre les taux de décroissance de l'émetteur dans ces deux systèmes, ce qui nous donne l'équation (5.9).

$$\eta_F = \Gamma_r = \frac{\gamma_r}{\gamma_0} \quad (5.9)$$

Où  $\eta_F$  est l'augmentation du taux de fluorescence.

#### **Augmentation du taux de fluorescence pour un système non-saturé :**

Lorsque l'excitation de l'émetteur est cette fois non saturée, l'augmentation du taux de fluorescence se calcule en faisant intervenir le rendement quantique du système étudié (q équation (5.4)) et l'intensité électrique d'excitation à l'endroit du NE via l'équation (5.10) [18]. Cela s'explique par le fait que dans ce mode d'excitation, pour un système donné, la fluorescence, qui est la quantité de photons émise en champ lointain, dépendra du rendement de l'émetteur q (équation (5.4)) qui caractérise le pourcentage de photons rayonnés en champ lointain. Cette fluorescence variera ensuite en fonction de l'intensité électrique excitatrice à l'endroit du dipôle comme cela est expliqué plus haut. Si maintenant nous souhaitons comparer le gain de fluorescence d'un même émetteur dans deux systèmes différents, nous calculons l'augmentation du taux de fluorescence pour un même émetteur c'est à dire le rapport des taux de fluorescence pour chacun des systèmes , ce qui aboutit à l'équation (5.10).

$$\eta_F = \frac{q \cdot I_e}{\eta_i \cdot I_0} \quad (5.10)$$

Où q est le rendement quantique du système étudié et  $\eta_i$  le rendement quantique du NE dans le milieu homogène non absorbant (c'est à dire le rendement quantique intrinsèque de celui-ci).  $I_e$  et  $I_0$  sont respectivement les intensités électriques à l'endroit de l'émetteur avec et sans la structure à proximité de celui-ci. Il est montré à titre d'exemple sur la figure 5.2 un calcul du rapport  $I_e/I_0$  pour un NE au contact d'un substrat diélectrique, excité par un faisceau focalisé, avec et sans la présence d'une nanoparticule d'or. En l'absence



de la particule, l'intensité électrique à l'endroit de l'émetteur vaut une certaine valeur  $I_0$ . La présence à proximité du NE de la particule modifie l'intensité électrique à l'endroit du NE. Cela aura pour conséquence de modifier la fluorescence de l'émetteur, il y aura donc une augmentation ou une diminution de cette fluorescence.

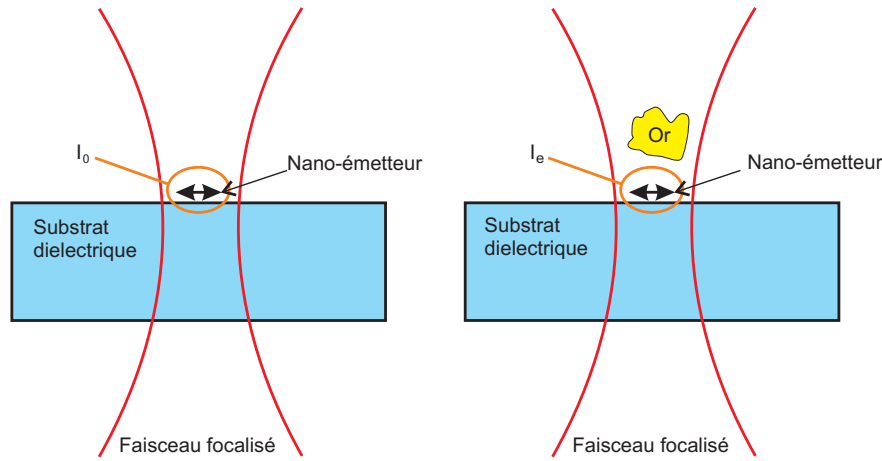


FIGURE 5.2 – Schéma explicatif du calcul des intensités électriques  $I_e$  et  $I_0$ .

Ainsi, en remplaçant  $q$  et  $\eta_i$  par leurs expressions équations (5.3) (5.4), nous obtenons une nouvelle équation de l'augmentation de la fluorescence  $\eta_F$  (5.11).

$$\eta_F = \frac{\frac{\gamma_r}{\gamma}}{\frac{\gamma_0}{\gamma_0 + \gamma_i}} \frac{I_e}{I_0} \quad (5.11)$$

Puis en utilisant les équations (5.7) et (5.8) nous obtenons l'équation de l'augmentation de la fluorescence (5.12).

$$\eta_F = \frac{\Gamma_r}{\Gamma_{tot}} \frac{I_e}{I_0} \quad (5.12)$$

Grâce à toutes ces équations, il sera donc possible de faire une étude complète en fonction des caractéristiques connues de notre NE.

De fait, le rendement intrinsèque  $\eta_i$  des BQs utilisées en manipulation étant estimé par le constructeur comme valant entre 30 et 50 %, nous avons donc considéré celui-ci,

dans toute la partie théorique, égal à 40 %, c'est-à-dire que  $\eta_i = \gamma_0/(\gamma_0 + \gamma_i) = 0.4$ , ou encore que le taux de décroissance  $\gamma_i = 1,5 \cdot \gamma_0$ . En outre, les études théoriques exposées seront examinées aussi bien pour une excitation en mode saturé qu'en mode non saturé.

### 5.2.2 Etude classique

Malheureusement nos simulations FDTD (Finite Difference Time Domain) ne prennent pas en compte les phénomènes quantiques. Aussi, des correspondances avec des grandeurs classiques ont dû être utilisées de manière à pouvoir comprendre et expliquer le comportement des émetteurs au voisinage de nanostructures.

Comme nous l'avons dit précédemment, les principaux paramètres qui vont caractériser l'émission d'un NE sont le facteur de Purcell ( $\Gamma_{tot}/F_P$ ) qui est lié au temps de vie de l'état excité (inversement proportionnel) et l'augmentation du taux de fluorescence ( $\eta_F$ ) en mode saturé et non saturé.

#### Augmentation du taux de décroissance

Pour avoir accès à ces grandeurs quantiques, il est possible de trouver des équivalences entre les grandeurs quantiques et les grandeurs classiques, pour cela nous utilisons le principe de correspondance qui a été défini par Max Born en 1936 [154] qui permet de calculer le taux d'émission spontanée d'un NE à partir de la puissance émise par un dipôle électrique [155]. Pour cela nous faisons intervenir les puissances émises par un NE telles que la puissance rayonnée en champ lointain par l'émetteur ( $P_r$ ) et celle totale émise par celui-ci ( $P_{tot}$ ). Ces équivalences sont données équations (5.13) et (5.14).

$$\Gamma_r = \frac{\gamma_r}{\gamma_0} = \frac{P_r}{P_0} \quad (5.13)$$

$$\frac{\gamma_r + \gamma_{nr}}{\gamma_0} = \frac{P_{tot}}{P_0} \quad (5.14)$$


---

Où  $P_{tot}$  est la puissance totale émise par le NE en présence de la structure,  $P_0$  la puissance totale émise par le NE dans le milieu homogène sans la structure et  $P_r$  est la puissance rayonnée en champ lointain par l'émetteur en présence de la structure. A noter que dans un milieu homogène non-absorbant  $P_{tot}=P_r=P_0$ .

En utilisant l'équation (5.14) et l'égalité  $\gamma_i = 1.5*\gamma_0$ , l'équation (5.8) de l'augmentation du taux de décroissance total  $\Gamma_{tot}$  devient (5.15).

$$F_p = \Gamma_{tot} = \frac{\gamma}{\gamma_{tot0}} = \frac{P_{tot}}{2.5 * P_0} + 0.6 \quad (5.15)$$

### Augmentation du taux de fluorescence

L'augmentation du taux de fluorescence en mode saturé  $\eta_F$  devient alors l'équation (5.16).

$$\eta_F = \Gamma_r = \frac{\gamma_r}{\gamma_0} = \frac{P_r}{P_0} \quad (5.16)$$

Où  $P_r$  est la puissance rayonnée en champ lointain par le NE en présence de la structure.

De même, en utilisant les équations (5.13) et (5.15) dans l'équation (5.12), l'augmentation de la fluorescence  $\eta_F$  en mode non saturé devient l'équation (5.17).

$$\eta_F = \frac{q \cdot I_e}{\eta_i \cdot I_0} = \frac{\Gamma_r}{\Gamma_{tot}} \frac{I_e}{I_0} = \frac{\frac{P_r}{P_0}}{\frac{P_{tot}}{2.5 \cdot P_0} + 0.6} \frac{I_e}{I_0} \quad (5.17)$$

Avec  $q$  défini par l'équation (5.18).

$$q = \frac{\frac{P_r}{P_0}}{\frac{P_{tot}}{P_0} + 1.5} \quad (5.18)$$

Du fait de la taille nanométrique des différents NE existants, tels que les molécules uniques, les BQs et autres nano-cristaux de diamant à centres colorés, et pour pouvoir utiliser le principe de correspondance de Born, il a été fait le choix dans ce manuscrit de

---

considérer en première approximation ces NEs comme des dipôles électriques. L'équation (5.17) devient alors l'équation (5.19).

$$\eta_F = \frac{\Gamma_r}{\Gamma_{tot}} \frac{I_e}{I_0} = \frac{\frac{P_r}{P_0}}{\frac{P_{tot}}{2,5.P_0} + 0.6} \frac{|\mathbf{n}_p \cdot \mathbf{E}(r)|^2}{|\mathbf{n}_p \cdot \mathbf{E}_0(r)|^2} \quad (5.19)$$

Où  $\mathbf{n}_p$  est le vecteur unitaire représentant l'orientation du dipôle,  $\mathbf{E}(r)$  et  $\mathbf{E}_0(r)$  le champ électrique du faisceau excitateur à l'emplacement de l'émetteur, respectivement avec et sans la structure.

## Récapitulatif

Pour résumer cette partie dans laquelle de nombreuses grandeurs indispensables à la compréhension ont été introduites, les principales d'entre elles utilisées par la suite sont rappelées ci-dessous.

$\eta_i$  est le rendement quantique intrinsèque du NE, il est défini quantiquement par l'équation (5.3), il correspond aux pertes intrinsèques du NE.

$\eta_q$  est le rendement quantique total du NE, il est défini quantiquement par l'équation (5.4) et classiquement par l'équation (5.18), il correspond au pourcentage de l'énergie rayonnée en champ lointain.

$\Gamma_{tot}$  est l'augmentation du taux de décroissance total appelé aussi facteur de Purcell, elle est définie quantiquement par l'équation (5.8) et classiquement par l'équation (5.15), elle correspond au facteur de réduction du temps de vie de l'état excité d'un NE dans deux environnements différents.

$P_{tot}/P_0$  est l'augmentation de la puissance émise par le NE dans deux environnements différents. Cette valeur est égale à l'augmentation du taux de décroissance  $\Gamma_{tot}$  si le ren-

---

dement quantique intrinsèque  $\eta_i$  vaut 1.

Et enfin,  $\eta_F$  est l'augmentation du taux de fluorescence, elle est définie quantiquement par l'équation (5.9) en mode saturé et par l'équation (5.10) en mode non-saturé. Classiquement elle est définie par l'équation (5.16) en mode saturé et par l'équation (5.19) en mode non-saturé, elle correspond à l'augmentation de l'émission rayonnée en champ lointain par le NE pour deux environnements différents.

## 5.3 Partie Simulation

### 5.3.1 Calcul de la puissance émise par un dipôle électrique

Comme nous l'avons vu précédemment, le calcul du facteur de Purcell ( $\Gamma_{tot}$ ) et de l'augmentation du taux de fluorescence ( $\eta_F$ ) dans nos simulations nécessite la connaissance de la puissance totale ( $P_{tot}$ ) et radiative ( $P_r$ ) émise par le dipôle (équations (5.15) (5.16) (5.19)) dans tous les cas de figures. C'est-à-dire aussi bien dans le vide ou dans des milieux homogènes non-absorbants ( $P_0$ ), qu'au contact de structures diélectriques et métalliques. Ce sont ces dernières qui nous ont particulièrement posé des problèmes. En effet, dans un milieu diélectrique, n'ayant pas d'absorption, le calcul de la puissance émise par une source peut se faire en intégrant le flux du vecteur de Poynting sur six faces du parallélépipède (en 3D) entourant la source lumineuse comme il est montré sur la figure 5.3. Cela n'est en revanche plus possible lorsqu'un métal existe à l'intérieur du volume, du fait qu'une partie de l'énergie sera absorbée par du métal (principalement par effet joule). Par conséquent, la puissance collectée par les six faces ne sera pas exactement celle émise par la source ( $P_{tot}$ ), mais uniquement la partie rayonnée en champ lointain ( $P_r$ ).

Notre réflexion à donc d'abord été la suivante : s'il n'est pas possible d'obtenir la puissance émise par un NE ( $P_{tot}$ ) en collectant le flux du vecteur de Poynting autour de la structure, peut être était-il possible de le faire uniquement autour du dipôle. Cela

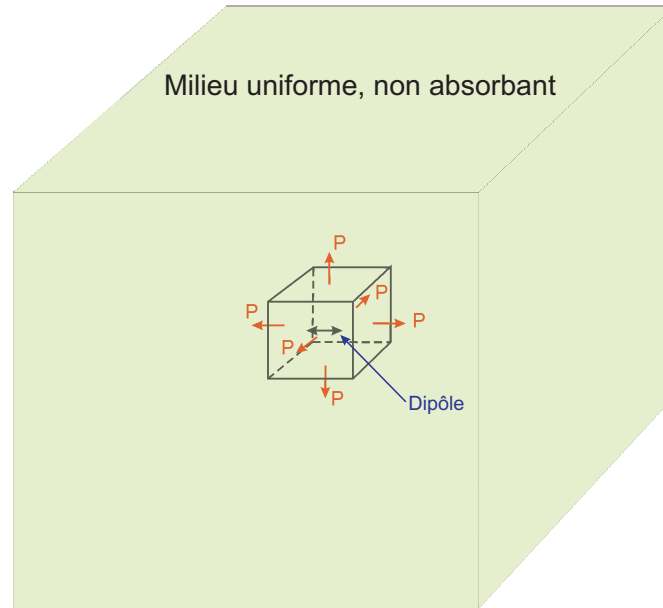


FIGURE 5.3 – Schéma de la puissance calculée à travers six plans entourant le dipôle dans un milieu homogène et non-absorbant.

implique de définir un petit cube autour de celui-ci, placé entre les parties métalliques absorbantes et la source (qui n'étaient espacés parfois que de quelques nanomètres), un exemple d'un tel volume défini entre un dipôle et une sphère d'or est montré figure 5.4. Cela nous oblige notamment à réduire le maillage spatial pour avoir des plans bien définis spatialement (plusieurs nœuds de la grille FDTD) et ainsi limiter les risques d'erreurs.

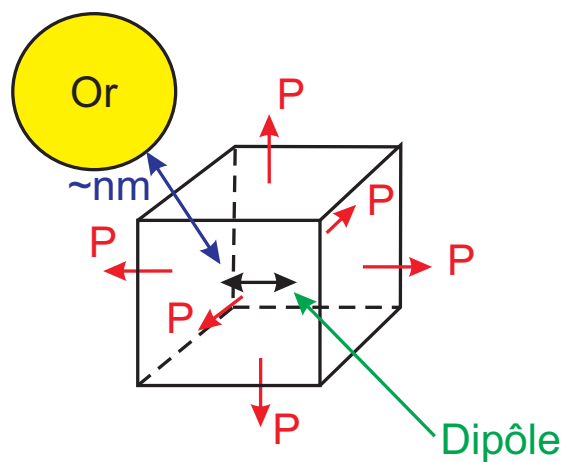


FIGURE 5.4 – nano-bille d'or placée à quelques nanomètres d'un dipôle électrique.

Malheureusement, il s'est avéré lors des simulations tests pour valider cette méthode,

---

que la puissance calculée via le flux du vecteur de Poynting à proximité du dipôle, divergeait. Cela s'explique par le fait qu'à quelques nanomètres du dipôle, les champs électriques et magnétiques sont principalement évanescents et leurs amplitudes sont très grandes. Dès lors, s'il s'avère que le flux du vecteur de Poynting d'un des points du maillage est compté deux fois ou au contraire oublié, la valeur obtenue sera très éloignée de la valeur réelle. Il nous est donc apparu que cette méthode n'était pas adaptée au calcul de la puissance émise par le dipôle. De plus la réduction du maillage spatial induit automatiquement une augmentation du temps de calcul nécessaire à la simulation, en effet dans un code FDTD 3D, lorsque le maillage spatial est diminué d'un facteur  $n$  le temps de simulation est augmenté d'un facteur  $n^4$  (3 pour le maillage spatial + 1 pour le maillage temporel). Cette méthode ne pouvait donc pas être utilisée ici.

Une autre solution envisagée fut celle de considérer la puissance totale ( $P_{tot}$ ) émise par le dipôle comme la somme de la puissance rayonnée en champ lointain ( $P_r$ ) et la puissance absorbée par le métal ( $P_{nr}$ ) :  $P_{tot}=P_r+P_{nr}$ . Avec  $P_{nr}$  défini par l'équation (5.20).

$$P_{nr} = -0.5 \int \int \int Re(\mathbf{J}^* \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})) dV \quad (5.20)$$

Où  $\mathbf{J}$  et  $\mathbf{E}$  sont respectivement les courants et champs électriques à l'intérieur du métal à proximité du dipole.

Malheureusement une fois de plus cette solution ne semblait pas convenir, il était en effet très difficile de connaître les valeurs de  $\mathbf{J}$  et  $\mathbf{E}$  pour toutes les parties métalliques d'une simulation d'approximativement  $4320 \mu\text{m}^3$  ( $12*12*30 \mu\text{m}^3$ ), cela aurait représenté des centaines de giga-octets de donnée par simulation. Même un super ordinateur comme le BlueGene, dont on m'a donné l'opportunité d'utiliser lors de mon échange à IBM, n'aurait pu stocker autant de données. Nous avons donc dû trouver une autre solution à notre problème.

La solution fut trouvée dans un article de Kaminski et al [156], dans lequel les auteurs utilisaient une méthode, capable de calculer directement la puissance émise par le dipôle, uniquement grâce au champ électrique à l'endroit du dipôle et le moment dipolaire lui-même. Nous avons alors trouvé dans le livre Principles of nano-optics de Novotny et al [108], la formule dont nous avons besoin, permettant de calculer cette puissance totale émise par le dipôle électrique  $P_{tot}$ , cette formule est donnée par l'équation (5.21).

$$\frac{P_{tot}}{P_0} = 1 + \frac{6\pi\epsilon_0\epsilon}{\|\mu\|^2} \frac{1}{k^3} \text{Im}\{\mu^* \cdot E_s(r_0)\} \quad (5.21)$$

Où  $\epsilon_0$  et  $\epsilon$  sont respectivement les constantes diélectriques du vide et du milieu dans lequel baigne le dipôle,  $k$  la constante de propagation (à la longueur d'onde d'émission du dipôle dans le vide),  $\mu$  le moment dipolaire du dipôle et  $E_s(r_0)$  le champ réfléchi dû à la présence de la structure au point  $r_0$  du dipôle défini par l'équation (5.22).

$$E(r_0) = E_0(r_0) + E_s(r_0). \quad (5.22)$$

Où  $E(r_0)$  est le champ électrique à l'endroit du dipôle en présence de la nano-structure à proximité de l'émetteur,  $E_0(r_0)$  le champ électrique à l'endroit du dipôle sans la structure,  $E_s(r_0)$  est donc la partie du champ électrique induite par la présence de la structure.

Grâce à cette définition, il nous a alors été possible de calculer la puissance totale émise par le dipôle en présence d'une structure métallique à sa proximité. Connaissant la puissance rayonnée en champ lointain par l'intégration du flux du vecteur de Poynting dans toutes les directions ( $P_r$ ), nous avons pu déterminer la partie émise par le dipôle mais absorbée par le métal ( $P_{nr}$ ) via l'équation  $P_{tot} = P_r + P_{nr}$ .

Ainsi, il devient possible de calculer l'ensemble des paramètres caractéristiques d'un NE tels que l'augmentation du taux de fluorescence  $\eta_F$ , l'augmentation du taux de dé-

---



croissance total  $\Gamma_{tot}$  et le rendement quantique  $q$  à proximité d'une nanostructure.

### 5.3.2 Simulation test

De manière à valider cette méthode, en dépit du fait qu'elle soit aujourd'hui de plus en plus utilisée dans la littérature, nous avons tout d'abord lancé une série de simulations tests. Ces simulations consistaient à reproduire un résultat obtenu par Koenderink et al [24], sur l'émission d'un dipôle (de rendement quantique intrinsèque  $\eta_i = 1$ ) placé parallèlement à une interface Silicium-air. Dans cette article les auteurs calculaient l'augmentation du taux de décroissance radiatif ( $\Gamma_r = \Gamma_{tot}$  ici puisque le matériau est diélectrique (pas de perte)) d'un dipôle électrique parallèle à l'interface silicium-air, en fonction de la distance les séparant comme montré sur la figure 5.5. Nous observons sur cette figure que le taux de décroissance radiatif varie pour des faibles valeurs de la distance dipôle-interface.

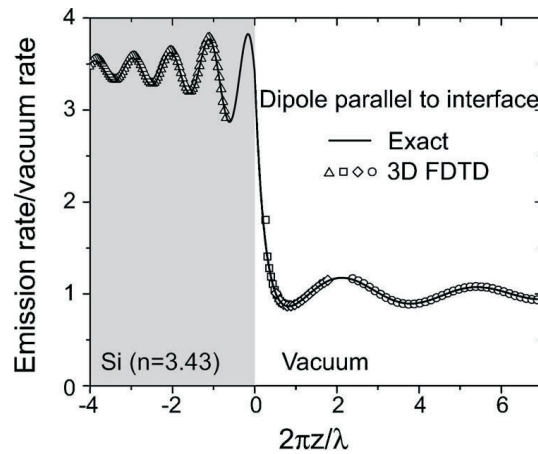


FIGURE 5.5 – Augmentation du taux de décroissance radiatif d'un dipôle parallèle à l'interface entre du silicium et de l'air, en fonction de la distance dipôle-interface.  $z$  étant la distance dipole interface et  $\lambda$  la longueur d'onde [24].

Cette étude à ensuite été reproduite par simulation 3D-FDTD et le calcul de l'augmentation du taux de décroissance radiatif fut effectué grâce à l'équation (5.13). La puissance émise par le dipôle  $P_r$  ( $= P_{tot}$  ici puisque milieu non-absorbant) a été calculée par intégration du flux du vecteur de Poynting autour du dipôle et par la méthode présentée

précédemment (équation (5.21)), les résultats obtenus à la longueur d'onde de 830 nm sont montrés sur la figure 5.6.

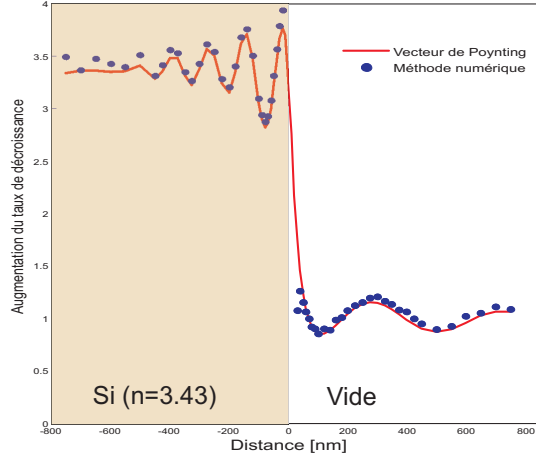


FIGURE 5.6 – Augmentation du taux de décroissance radiatif d'un dipôle parallèle à l'interface entre du silicium et de l'air, calculé par intégration du flux du vecteur de Poynting et par la méthode numérique décrite à  $\lambda=830$  nm.

Comme nous pouvons le constater, nous obtenons un bon accord qualitatif entre les résultats 3D-FDTD de la publication (figure 5.5) et nos deux méthodes de calculs (figure 5.6) avec au maximum une différence de 5% entre les deux méthodes (les deux courbes de la figure 5.6). La FDTD associée à la méthode de calcul faisant intervenir le champ à l'endroit du dipôle paraît donc tout à fait adaptée pour calculer la puissance totale émise par un dipôle électrique au voisinage d'une structure. Nous allons donc l'utiliser par la suite pour le calcul de l'augmentation du taux de fluorescence et de décroissance totale ainsi que pour le rendement quantique des NEs à travers les équations (5.18) (5.15), (5.16) et (5.19).

## 5.4 Simulations effectuées

### 5.4.1 Pointe polymère et BNA

Dans cette section, nous allons traiter les deux cas d'une sonde BNA et d'une pointe polymère afin de mettre en évidence leurs effets sur (a) l'augmentation du taux de décroissance totale, (b) le rendement quantique et (c) l'augmentation du taux de fluorescence en mode

---

saturé et non-saturé d'un dipôle électrique placé dans leur proche voisinage.

### Sonde BNA

La détection de nano-émetteur unique est un des grands challenges de la nano-optique et de la bio-photonique. Alors qu'aujourd'hui, des systèmes faisant intervenir des nano-antennes en bout de pointe pour la microscopie en champ proche parviennent à détecter ces émetteurs uniques [4, 63, 18], la collection de la fluorescence de ces NEs se fait via un dispositif champ lointain constitué d'objectif de microscope, possédant un rendement assez mauvais (environ 1 % de la fluorescence [23, 157]). Dès lors, nous avons proposé la collection de ce signal de fluorescence par un moyen efficace permettant de le coupler à un mode guidé d'une fibre optique c'est à dire la BNA intégrée sur sonde de microscope optique en champ proche. Deux effets sont donc à mettre en évidence : le couplage BNA-dipôle qui doit être efficace via une augmentation du taux de fluorescence puis le couplage du signal émis par la BNA afin qu'il présente un très bon recouvrement avec le mode guidé de la sonde (fibre optique). Ce dernier point fera l'objet du chapitre suivant.

La première des études à réaliser était de vérifier l'effet de la BNA sur le facteur de Purcell ( $\Gamma_{tot}$ ) d'un dipôle électrique (émettant à la longueur d'onde de 1550 nm) et en particulier son évolution en fonction de la distance NE-BNA. Pour cela, nous supposons que le dipôle électrique se trouve dans une couche de diélectrique ( $n=1.45$ ) à 5 nm de la surface simulant ainsi un NE qui aurait été déposé par spin-coating. Une sonde BNA constituée d'une pointe polymère de 30  $\mu\text{m}$  et de rayon de courbure 500 nm, métallisée par 100 nm d'aluminium, avec une BNA de dimension  $D=315$  nm et de gap  $G=45$  nm est gravée à son extrémité, comme il est montré sur la figure 5.7. Nous avons effectué des simulations FDTD pour plusieurs distances sonde-interface en supposant que l'axe de symétrie de la pointe est toujours fixe (axe  $Oz$ ) passant par le NE (figure 5.7). Pour les calculs FDTD, nous avons considéré une fenêtre de calcul de  $13 \mu\text{m} \times 13 \mu\text{m} \times 33 \mu\text{m}$  (XYZ), avec un maillage fin de 5 nm, autour de l'extrémité de la pointe ayant un volume

de  $400 \text{ nm} \times 400 \text{ nm} \times 450 \text{ nm}$  (XYZ). Le reste du volume de la simulation est grossièrement discrétisé avec un maillage spatial de pas 25 nm. Le volume total de la simulation est entouré d'une couche de PML (Perfectly Matched Layers) permettant d'éliminer par absorption toute énergie parasite due à des réflexions sur les limites de la fenêtre de calcul.

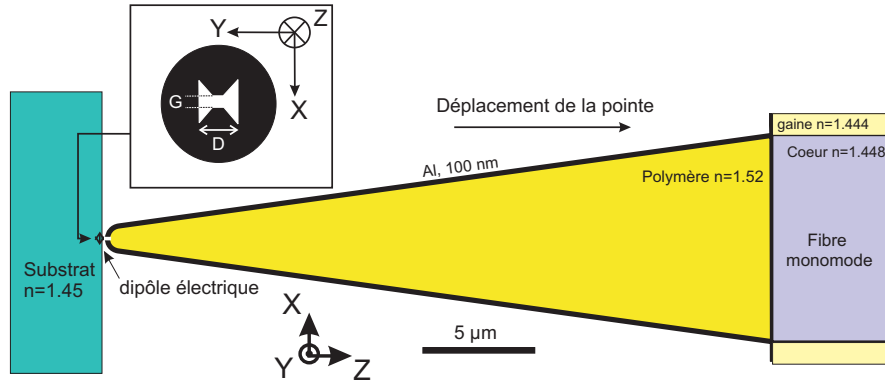


FIGURE 5.7 – Schéma de la pointe BNA balayant en Z un dipôle placé à 5 nm dans un substrat d'indice 1.45.

### Augmentation de la puissance émise et facteur de Purcell

Pour chacune de ces simulations nous avons calculé la puissance totale émise par le dipôle normalisée ( $P_{tot}/P_0$ ) grâce à la méthode décrite par l'équation (5.21) où  $P_{tot}$  est la puissance émise par le dipôle en présence de la pointe et  $P_0$  la puissance émise par le dipôle dans un milieu homogène d'indice  $n=1.45$ . Ces valeurs nous ont permis de tracer le Facteur de Purcell  $\Gamma_{tot}$  (équation (5.15)) pour chaque position de la pointe. Ces résultats sont présentés sur la figure 5.8.

De ces résultats nous mettons en évidence que les deux facteurs  $P_{tot}/P_0$  et  $\Gamma_{tot}$  décroissent tous les deux de manière exponentielle lorsque la pointe s'éloigne du dipôle. Cela signifie que l'antenne en bout de pointe interagit plus fortement avec le dipôle électrique lorsque la distance les séparant est petite, il y a donc un effet local important sur ces grandeurs. Ceci s'explique facilement à travers la nature même de la résonance de la BNA

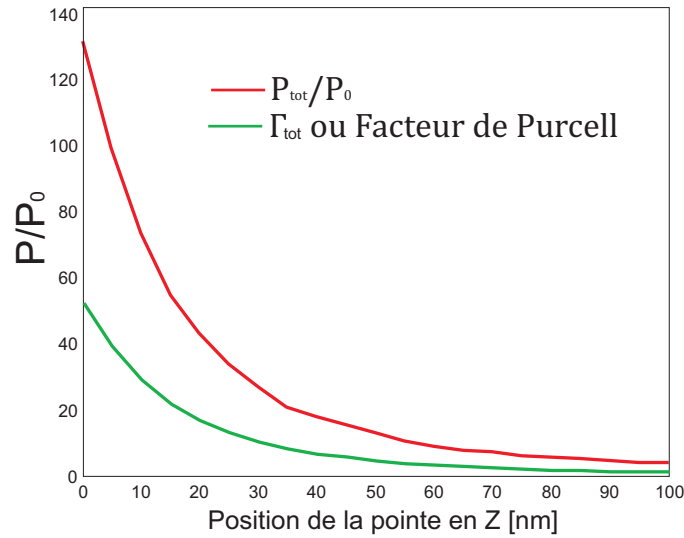


FIGURE 5.8 – Facteur de Purcell et augmentation de la puissance émise par le dipôle en fonction de la distance substrat-pointe.

qui présente une très forte localisation du champ EM au niveau de son gap. Le couplage BNA-NE, lorsqu'il existe, conduit donc à une modification de la LDOS via une augmentation de  $\Gamma_{tot}$ . D'autre part, nous savons que lorsque le rendement quantique intrinsèque  $\eta_i$  vaut 1,  $P_{tot}/P_0 = \Gamma_{tot}$ . Dès lors, et en accord avec l'équation (5.15), nous voyons sur la figure 5.8 que l'augmentation du taux de décroissance total chute lorsque le rendement quantique intrinsèque diminue (dans notre cas il vaut 0.4), c'est-à-dire que le facteur de réduction du temps de vie de l'état excité du NE chute d'autant. Dans notre cas le temps de vie de l'état excité diminue théoriquement d'un facteur 52 entre le dipôle dans le milieu homogène d'indice  $n=1,45$  et le système décrit ici. Nous pouvons donc conclure de cette étude que les deux paramètres distance "dipôle-antenne" et rendement quantique intrinsèque sont d'une très grande importance dans la réduction du temps de vie de l'état excité du NE.

### rendements quantiques

Lors des mêmes simulations numériques FDTD nous avons calculé aussi l'augmentation du taux de décroissance radiatif  $\Gamma_r = P_r/P_0$  (équation (5.13)) et l'augmentation du

taux de décroissance radiatif dans la pointe  $P_{rpointe}/P_0$  où  $P_{rpointe}$  est la puissance rayonnée et collectée dans la pointe. Cette dernière grandeur est déterminée comme étant le flux du vecteur de Poynting à travers une surface à l'intérieur de la fibre optique englobant le cœur de celle-ci (surface  $\Sigma$ ). De ces valeurs nous avons pu déterminer les rendements quantiques (équation (5.18)) total  $q$  et dans la pointe  $q_{pointe}$ .

Il est apparu que ces rendements quantiques, sur les 100 premiers nanomètres, étaient indépendants de  $Z$ . Le rendement quantique total a une valeur de 0.5 signifiant que la moitié de l'énergie émise par le dipôle électrique est absorbée par le métal couvrant la pointe. Cette valeur de  $q$  est plus faible que pour les antennes dipolaires plasmoniques [19]. En effet, une grande quantité de métal, non seulement au niveau de la BNA où existe une forte résonance EM mais aussi le long de la sonde, interagit avec le signal diffusé par l'extrémité de la sonde via l'excitation et la propagation de plasmons de surface le long des flancs extérieurs et intérieurs de la pointe (côté métal-air mais également métal-polymère), comme il est montré sur la figure 5.9. Une forte dissipation de l'énergie par effet Joule prend place ce qui nuit fortement au signal radiatif. De même, le rendement quantique à l'intérieur de la pointe est relativement faible valant 0.038. Cette valeur s'explique par la grande quantité d'énergie rayonnée du côté des  $Z$  négatifs (80 % de l'énergie rayonnée en champ lointain l'est du côté du substrat).

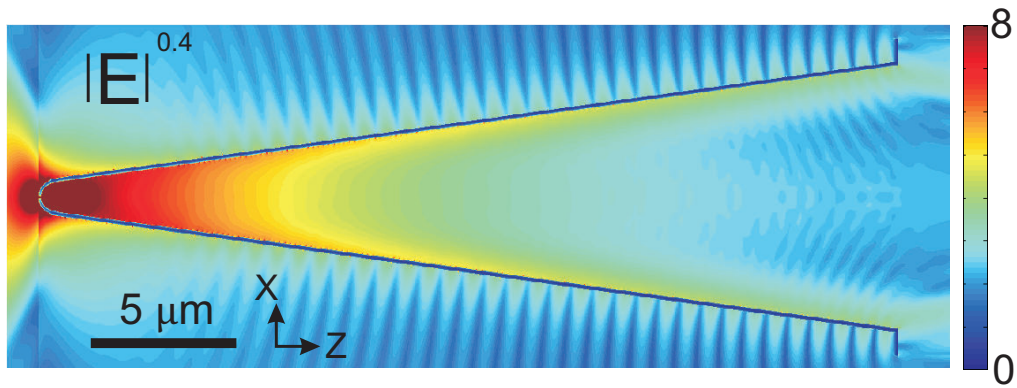


FIGURE 5.9 – Distribution de l'intensité électrique (racine cinquième) au voisinage et à l'intérieur de la pointe BNA, excitée par un dipôle électrique placé à 5 nm en face de son extrémité se trouvant en contact du substrat diélectrique d'indice  $n=1.45$ .

En conclusion, cette étude nous montre les limites de la sonde BNA en ce qui concerne le taux de collection du rayonnement en champ lointain soit 7.6 % ( $3.8 \times 2$  car rendement quantique de 0.5). 80% de l'énergie rayonnée en champ lointain par le dipôle se propage dans le substrat alors que 50% de l'énergie totale émise est absorbée par le métal. Néanmoins, cette pointe présente une forte diminution du temps de vie de l'état excité d'un NE (environ  $52 \times = 1/\Gamma_{tot}$ ).

### Pointe polymère

De manière à pouvoir comparer ces résultats avec ce qui se fait de façon conventionnelle en microscopie optique en champ proche, nous avons mené le même type de simulation mais en considérant cette fois une pointe polymère classique (avec les mêmes dimensions mais sans métal). Les simulations schématisées sur la figure 5.10 ont été effectuées dans les mêmes conditions (même code FDTD) que celles avec la BNA.

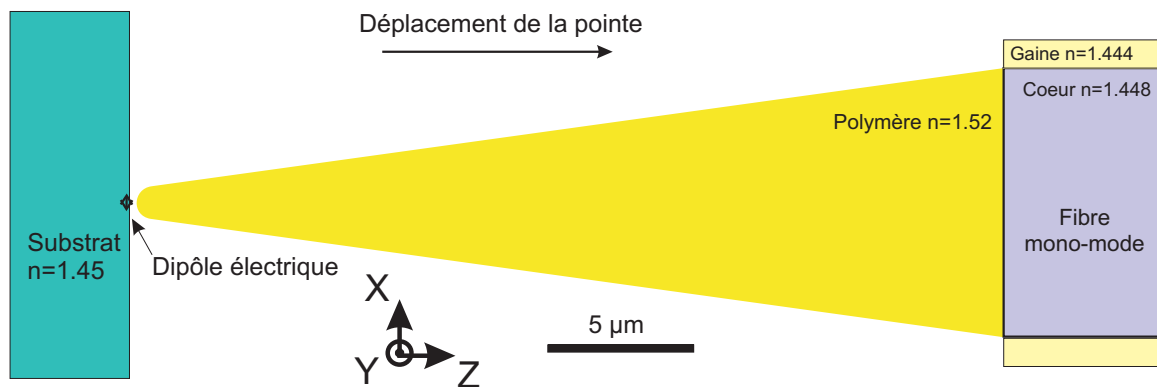


FIGURE 5.10 – Schéma de la pointe polymère balayant en Z un dipôle placé à 5 nm dans un substrat d'indice 1.45.

### augmentation de la puissance émise et facteur de Purcell

Comme auparavant les simulations consistaient à étudier le comportement d'émission du dipôle placé dans le substrat diélectrique d'indice optique  $n=1.45$ , en face duquel est

placée une pointe en polymère de 30  $\mu\text{m}$  de long et rayon de courbure 500 nm en fonction de la distance les séparant.

Comme pour la pointe BNA, nous avons calculé :  $P_{tot}/P_0$  ( $=P_r/P_0$  ici puisqu'aucun matériau absorbant) et  $\Gamma_{tot}$  (équation (5.15)), cela pour chaque position de la pointe vis-à-vis de la surface.

Il est apparu que  $P_{tot}/P_0$  et  $\Gamma_{tot}$  ne dépendent pas de la distance dipôle-pointe sur les 100 premiers nanomètres, leurs valeurs étaient de 0.87 et 0.95 respectivement. C'est à dire que le temps de vie du NE en présence de la pointe polymère sera peu modifié par rapport à celui dans le milieu homogène d'indice 1.45. A noter que ce temps de vie est légèrement inférieur à celui d'un NE dans le milieu homogène, cela est dû à la discontinuité substrat-air avec laquelle le dipôle se trouve en contact, modifiant légèrement sa LDOS [24]. De plus, nous savons que lorsque le rendement quantique intrinsèque  $\eta_i=1$ ,  $P_{tot}/P_0=\Gamma_{tot}$ . Dès lors, l'augmentation du taux de décroissance total, en accord avec l'équation (5.15), augmente légèrement lorsque le rendement quantique intrinsèque diminue (dans notre cas il vaut 0.4).

Nous pouvons donc conclure de cette étude que la distance dipôle-antenne ne semble pas jouer un rôle primordial pour ce système dans le  $\Gamma_{tot}$ , pas plus que le rendement quantique intrinsèque du NE. Par contre, le temps de vie de l'état excité du NE sera beaucoup moins affecté pour cette pointe nue comparé au cas de la BNA.

### rendement quantique

Comme pour la pointe BNA le rendement quantique total, sur les 100 premiers nanomètres, est très peu sensible à la distance dipôle-pointe, il vaut environ 0.37. Cette valeur de 0.37 vient de la contribution du rendement quantique intrinsèque du NE (qui vaut 0.4

---



dans notre cas). Ensuite le rendement quantique à l'intérieur de la pointe vaut environ 0.12 et décroît de manière linéaire jusqu'à une valeur de 0.095 pour une distance de 100 nm. Il y a donc une dépendance à la distance dipôle-pointe sur le couplage de l'énergie du dipôle à la pointe qui vient du fait qu'une partie du rayonnement du dipôle est perdue dans les autres directions lorsque la pointe s'éloigne du dipôle.

En dépit de ce faible rendement quantique total, une importante remarque est à signaler à ce stade : il s'agit du fait qu'une grande partie de l'énergie rayonnée en champ lointain est collectée par la pointe. La figure 5.11 montre le pourcentage de l'énergie rayonnée en champ lointain collectée par la pointe en fonction de la distance dipôle-pointe. Nous voyons qu'à  $Z=0$  plus de 30 % de l'énergie rayonnée par le dipôle est collecté par la pointe, cette valeur est très supérieure aux 7.6 % relatifs à la pointe BNA. Ce très bon taux de collection est attribué à la grande valeur du rayon de courbure de la sonde polymère (500nm) jouant ainsi le rôle d'une micro-lentille permettant une collection efficace de l'émission du dipôle. Par contre il a été calculé que 60 % de l'énergie du dipôle étaient toujours rayonnés dans le substrat.

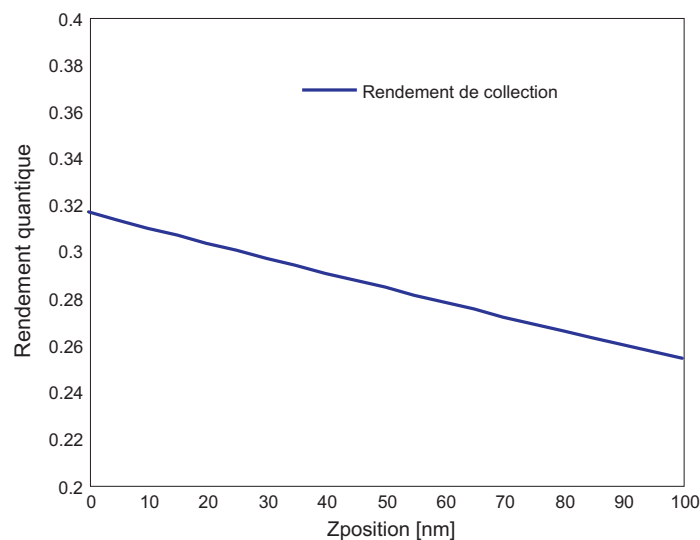


FIGURE 5.11 – Pourcentage de collection en bout de pointe polymère du rayonnement d'un dipôle déposé dans une couche de diélectrique d'indice optique de  $n=1.45$ .

En conclusion sur cette étude, il apparaît que le rendement quantique intrinsèque réduit fortement le rendement quantique du NE pour un couplage avec la pointe polymère. Par contre, cette pointe possède un bon taux de collection du rayonnement d'un dipôle déposé dans une couche telle que décrit ici.

### **Augmentation du taux de fluorescence des Pointes polymère et BNA**

En utilisant les deux études précédentes, il nous est maintenant permis de comparer ces deux pointes du point de vue de leurs augmentations du taux de fluorescence total et à travers la pointe. Pour cela nous devons séparer cette étude en deux cas : l'un pour un dipôle saturé par l'excitation et l'autre correspondant à un régime non saturé.

#### **Mode saturé**

Comme mentionné auparavant, en mode saturé l'augmentation du taux de fluorescence  $\eta_F$  est régie par l'équation (5.16). Cette augmentation peut être calculée en utilisant les valeurs utilisées précédemment. Les résultats sont représentés pour les pointes polymère et à ouverture papillon sur les figures 5.12 et 5.13 respectivement.

La figure 5.12 représente l'augmentation du taux de fluorescence total en fonction de la distance dipôle-pointe, c'est-à-dire l'augmentation de l'émission champ lointain dans tout l'espace entre le cas avec pointe et substrat et le cas dans un milieu homogène d'indice optique  $n=1.45$ . La figure 5.13 présente l'augmentation du taux de fluorescence en bout de pointe, à travers la surface  $\Sigma$ .

Comme nous pouvons le voir sur la figure 5.12, en  $Z=0$ , l'augmentation du taux de fluorescence total rayonnée en champ lointain dans le cas de la pointe BNA est nettement plus importante (d'un facteur 80 environ) que celle de la pointe polymère classique. Cela s'explique par le fait que la pointe à ouverture papillon augmente fortement le taux de

---

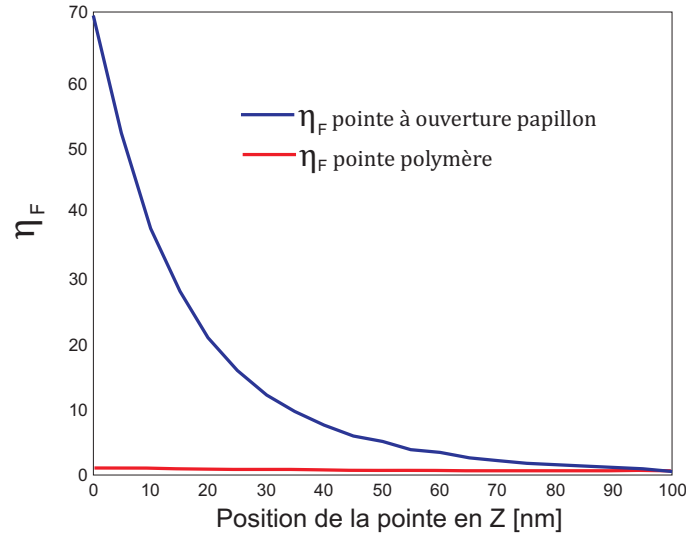


FIGURE 5.12 – augmentation du taux de fluorescence total (sur  $4\pi$  str), sous saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat.

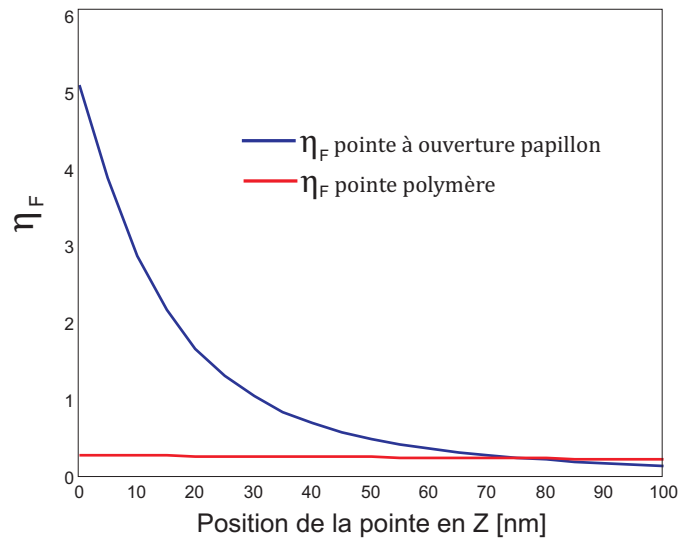


FIGURE 5.13 – Augmentation du taux de fluorescence dans la pointe, sous saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat.

décroissance radiatif par rapport à la pointe polymère par l'intermédiaire du fort confinement d'intensité électrique dans le gap de la BNA. Par contre, l'augmentation du taux de fluorescence pour la pointe à ouverture papillon décroît exponentiellement lorsque la pointe s'éloigne du dipôle jusqu'à rejoindre celle de la pointe polymère pour une distance de 95 nm. Cette dernière correspond donc à la distance typique au-delà de laquelle la BNA n'influe plus sur le taux de décroissance radiatif du NE du fait de la forte décroissance

exponentielle du champ électrique régnant dans le gap et interagissant avec le NE.

En revanche sur la figure 5.13, cette augmentation du taux de fluorescence rayonné dans la pointe BNA n'est cette fois que  $18 \times$  supérieure à celle dans la pointe polymère. Cela est dû au fait que la pointe polymère collecte plus efficacement le rayonnement champ lointain (31 % de la puissance rayonnée en champ lointain par le dipôle) que la pointe BNA ( $2 \times 3.8$  % (car rendement quantique de 0.5)). De plus, comme pour l'augmentation du taux de fluorescence total, nous observons une décroissance exponentielle lorsque celle-ci s'éloigne du dipôle, ce qui confirme une nouvelle fois le caractère local de l'influence de la nano-ouverture sur le dipôle électrique. Au delà d'une distance de 75 nm, la pointe polymère devient plus efficace en raison de la présence du métal sur la pointe BNA qui va jouer le rôle d'écran pour le signal incident.

### Mode non-saturé

Pour le mode non saturé, l'augmentation du taux de fluorescence est décrite par l'équation (5.17). Cette augmentation peut être calculée en utilisant les valeurs déterminées précédemment.  $I_e$  et  $I_0$  correspondent à un éclairage par un faisceau gaussien, polarisé parallèlement au diôle et à la BNA, de longueur d'onde  $\lambda = 808 \text{ nm}$  et focalisé au niveau du dipôle sur un tâche de dimension  $1.2 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$  de l'intensité. Les valeurs obtenues de  $\eta_F$  sont présentées pour les pointes polymère et à ouverture papillon sur les figures 5.14 et 5.15 respectivement.

La figure 5.14 représente l'augmentation du taux de fluorescence total en fonction de la distance dipôle-pointe et la figure 5.15 représente l'augmentation du taux de fluorescence en bout de pointe en fonction de la distance dipôle-pointe.

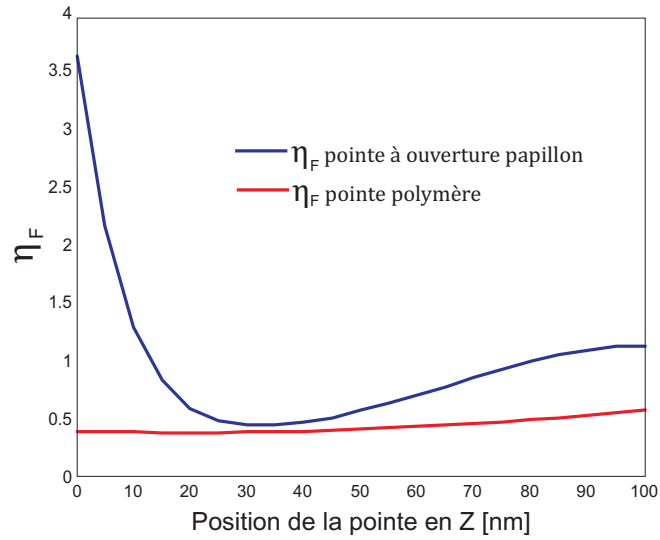


FIGURE 5.14 – augmentation du taux de fluorescence total, hors saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat.

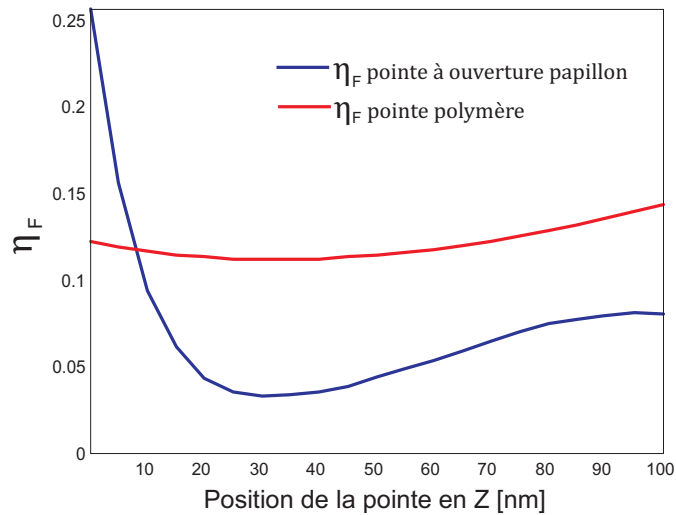


FIGURE 5.15 – Augmentation du taux de fluorescence dans la pointe, hors saturation, pour la pointe à ouverture papillon et la pointe polymère en fonction de la distance pointe-substrat.

Comme nous pouvons le constater, l'augmentation du taux de fluorescence total rayonnée en champ lointain de la pointe BNA (figure 5.14) est supérieure à celle de la pointe polymère quelque soit la distance entre le dipôle et la pointe sur les premiers 100 nm. De plus, il apparaît que le  $\eta_F$  de la pointe BNA décroît exponentiellement sur les 20 premiers nanomètres puis passe par un minimum avant de ré-augmenter légèrement jusqu'à 100 nm. Pour sa part, le  $\eta_F$  de la pointe polymère croît légèrement lorsque la pointe s'éloigne.

Étant donné le fait que les rendements quantiques sont constants pour les deux pointes, ces comportements s'expliquent principalement par le rapport  $I_e/I_0$  de l'équation (5.17). Les variations de ce rapport en fonction de la distance sont montrées sur la figure 5.16 pour chacune des pointes. Comme nous pouvons le constater, nous retrouvons le comportement global des  $\eta_F$  sur ce graphique.

En outre, nous remarquons que l'augmentation du taux de fluorescence pour la pointe BNA en mode non-saturé est très inférieure à celle en mode saturé. Ceci s'explique par le fait que la résonance de la BNA, qui permet d'exalter le champ au niveau du dipôle, a lieu à  $\lambda = 1550 \text{ nm}$  loin de la longueur d'onde d'excitation qui vaut  $808 \text{ nm}$ .

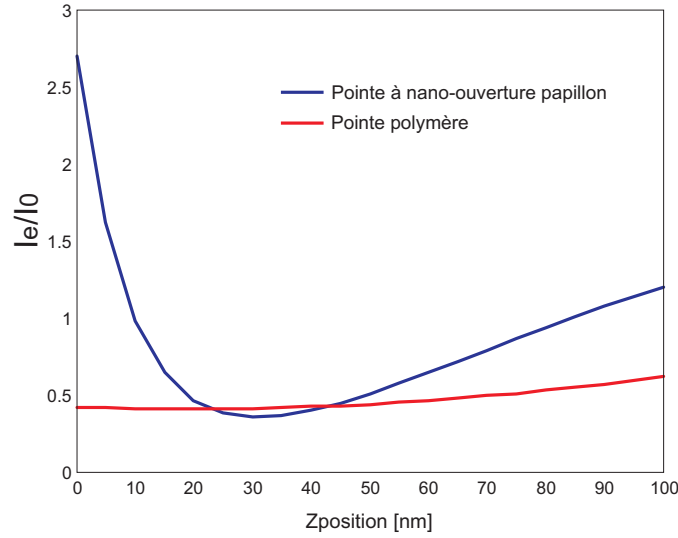


FIGURE 5.16 – Augmentation de l'intensité à l'endroit du dipôle pour la pointe BNA et la pointe polymère.

Concernant les augmentations du taux de fluorescence rayonné dans les deux pointes (figure 5.15), leurs comportements sont similaires au cas de la fluorescence totale. La principale différence entre les deux cas vient du fait qu'en s'éloignant de  $10 \text{ nm}$  du substrat, le  $\eta_F$  de la pointe polymère devient supérieur à celui de la pointe BNA. Encore une fois cela est attribué au meilleur couplage existant pour la pointe polymère par rapport à la pointe BNA. A noter qu'au contact du substrat la pointe BNA collecte 25% de la fluorescence

---

totale émise par un dipôle dans un milieu homogène d'indice optique de 1.45. Cette valeur est de loin supérieure au 1% collecté par les systèmes à objectif de microscope [23, 157], c'est donc un résultat important.

En conclusion, cette étude nous a permis de mettre en évidence l'influence de la distance dipôle-pointe sur des grandeurs telles que l'augmentation du taux de décroissance totale  $\Gamma_{tot}$  (facteur de Purcell), le rendement quantique  $q$  et l'augmentation du taux de fluorescence  $\eta_F$  pour la pointe BNA et la pointe diélectrique polymère. Il apparaît que c'est la pointe BNA qui est la plus sensible à cette distance avec une décroissance exponentielle sur les premiers nanomètres de  $\Gamma_{tot}$  et  $\eta_F$ . La pointe polymère, quant à elle, ne semble être que très peu affectée par cette modification de la distance. La pointe BNA devra donc être placée le plus près possible du NE pour que son couplage soit optimal avec la pointe. Néanmoins 50% de l'énergie rayonnée par le dipôle était absorbée par le métal dans ce cas. De plus, une grande quantité de l'énergie rayonnée par le dipôle se propage dans le substrat et donc se trouve perdue à la collection dans la pointe. Néanmoins, la pointe BNA semble être une bonne candidate pour la détection et la collection de manière efficace en champ proche de l'énergie émise par un NE unique déposé dans un substrat, avec une très forte réduction du temps de vie de l'état excité du NE et une forte augmentation du taux de fluorescence en mode saturé, ainsi qu'une bonne collection de la fluorescence en mode non saturé. Par contre, il est probable, du fait de la distribution spatiale des champs en bout de pointe, que le couplage de l'énergie rayonnée dans la pointe au mode de fibre ne soit pas optimal. Ceci est en cours d'évaluation à travers des simulations numériques par FDTD.

## 5.5 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous avons vu que grâce à des calculs classiques il était possible de remonter à des grandeurs quantiques des nano-émetteurs. Il a notamment été

décrit le calcul de la puissance émise par un dipôle électrique par des simulations FDTD à travers la connaissance du champ électrique induit par la présence d'une nano-structure au voisinage du dipôle. Dans les simulations effectuées, il a été montré qu'une pointe BNA pourrait être une bonne candidate pour réduire le temps de vie d'un NE, de même que pour collecter de manière efficace la fluorescence rayonnée par un NE en champ proche et guider cette énergie dans la fibre optique. La pointe polymère classique, quant à elle, possède un surprenant taux de collection de l'énergie rayonnée par un dipôle électrique transverse.



## Chapitre 6

# Optimisation du couplage entre une BQ et un mode de fibre optique

La première partie de ce chapitre est dédiée à une étude théorique puis expérimentale portant sur la comparaison de 3 pointes différentes de la microscopie en champ proche optique dans le but de les utiliser comme détecteur du signal émis par une BQ. Du fait qu'une grande partie de l'énergie rayonnée par le NE était perdue par propagation dans le substrat, nous avons décidé dans ce chapitre de placer directement l'émetteur quantique à l'extrémité des différentes sondes considérées à savoir : la pointe BNA et la pointe diélectrique polymère vues précédemment ainsi qu'une troisième pointe métallisée et munie d'une nano-ouverture circulaire. Dans la deuxième partie du chapitre, nous présenterons des études théoriques sur l'optimisation du couplage entre un NE et le mode guidé d'une fibre optique monomode à  $1.55\ \mu\text{m}$ .

### 6.1 Etude du couplage d'un NE avec 3 pointes de la microscopie en champ proche

#### 6.1.1 Etude théorique

Dans cette section, il sera comparé l'effet de quatre pointes de la microscopie en champ proche sur (a) l'augmentation du taux de décroissance total, (b) le rendement quantique et (c) l'augmentation du taux de fluorescence en mode saturé et non-saturé d'un dipôle électrique déposé au bout de ces pointes.

---

## Systèmes étudiés

Comme mentionné plus haut, nous avons tenu compte des enseignements obtenus précédemment concernant la perte par rayonnement dans le substrat, et nous avons considéré le cas où le dipôle est placé directement en bout de pointe, de manière à profiter du meilleur taux de collection et de la plus forte interaction dipôle-pointe. La même étude est effectuée pour trois types de sondes différentes : la pointe BNA, la sonde polymère nue et une sonde métallisée avec ouverture circulaire de diamètre de 60 nm (sonde SNOM typique) ou 220 nm (surface ouverte équivalente à celle de la BNA). Ces quatre configurations sont détaillées sur la figure 6.1. Pour ces simulations, aucune étude de la distance dipôle-pointe ne sera faite, néanmoins il sera différencié le mode saturé et celui non saturé pour l'augmentation de la fluorescence.

Ces simulations consistaient à exciter chacune des pointes par un dipôle transverse émettant à 1550 nm, centré et placé à 5 nm en face de l'extrémité de celles-ci. Le dipôle est supposé orienté parallèlement aux ailes métalliques du papillon pour la pointe BNA. Les méthodes de calcul des différentes grandeurs présentées ci-dessous sont les mêmes qu'auparavant. Les simulations schématisées sur la figure 5.7 ont été effectuées avec la même fenêtre de calcul que l'étude précédente, la simulation était entourée d'une couche de PML pour éviter toute réflexion parasite.

## Facteur de Purcell et rendement quantique

Dans un premier temps, et de manière à pouvoir étudier le taux de collection de ces quatre pointes (puissance collectée par la pointe sur celle émise par le dipôle), nous avons considéré le rendement quantique intrinsèque  $\eta_i$  du dipôle égal à 1. Ainsi  $\Gamma_{tot} = P_{tot}/P_0$  et  $q = P_r/P_{tot}$ , où  $P_0$  est la puissance du dipôle émise dans le vide,  $P_r$  la puissance rayonnée en champ lointain en présence de la pointe et  $P_{tot}$  la puissance totale émise par le dipôle en

---

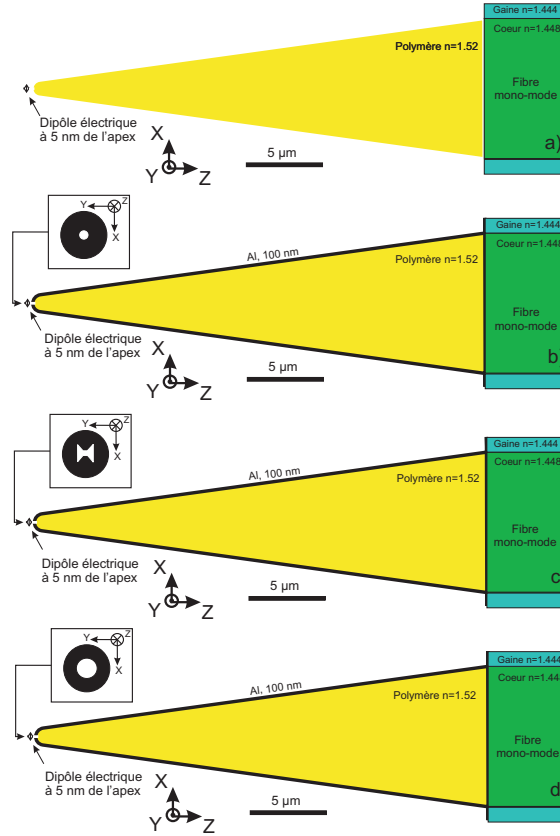


FIGURE 6.1 – Schémas de (a) la pointe polymère, (b) la pointe à ouverture circulaire ( $\emptyset$  60 nm), (c) la pointe à ouverture papillon de dimension  $D=315$  nm et  $G=45$  nm et (d) la pointe test à ouverture circulaire ( $\emptyset$  220 nm), toutes les quatre excitées par un dipôle électrique transverse, positionné à 5 nm de l'apex.

présence de la pointe. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau ci-dessous.

Type de pointe	$\Gamma_{tot}=P_{tot}/P_0$	$q (\eta_i=1)$	$q_{pointe} (\eta_i=1)$
Pointe polymère	1.05	1	0.5
Pointe à ouverture papillon	582	0.5	0.19
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 60 nm	37	0.0013	6.56e-5
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 220 nm	1.07	0.13	0.012

Comme nous pouvons le voir, le fait de ne plus considérer le substrat change le comportement des pointes polymère et BNA. En effet, alors que dans l'étude précédente une grande partie de l'énergie était perdue dans le substrat, il apparaît qu'une fraction de celle-ci est redirigée dans la pointe, augmentant ainsi le couplage dipôle-pointe. La pointe polymère collecte ainsi 50 % de l'énergie émise par le dipôle et la pointe BNA 19 %, soit respectivement 1.6 et 5 fois plus que pour l'étude précédente. Par contre, 50% de l'énergie émise par le dipôle est toujours absorbée par le métal dans le cas de la pointe BNA. En

effet, le fait d'enlever le substrat n'affecte en rien le comportement dissipatif du métal de la pointe.

En revanche, les pointes à nano-ouverture circulaire semblent être de très mauvaises candidates pour le couplage de l'énergie émise par un dipôle à la pointe, spécialement la pointe de diamètre d'ouverture de 60 nm avec une collection de 0.00665 % de l'énergie émise par le dipôle. En effet, une grande partie de l'énergie émise se trouve absorbée par le métal à savoir 99.87 % dans le cas de l'ouverture de 60 nm et 87 % pour l'ouverture de diamètre 220 nm. Ce résultat est assez surprenant, en effet le  $\Gamma_{tot}$  de la pointe à ouverture circulaire de diamètre de 220 nm vaut 1.07 car le dipôle se trouve à plus de 100 nm de toutes parties métalliques, dès lors son émission est très peu affectée par la présence de la sonde. Par contre, seulement 13 % de son énergie est rayonné en champ lointain, il apparaît dès lors que 87 % est absorbée par le métal. Ce résultat est difficile à interpréter mais une contribution du champ magnétique du dipôle est envisageable [33]. Ce résultat démontre que ces pointes à ouvertures circulaires ne sont pas adaptées au couplage d'un NE électrique à une pointe champ proche.

Dans un deuxième temps, de manière à pouvoir étudier l'effet sur le temps de vie de ces pointes, nous avons calculé  $\Gamma_{tot}$  en tenant compte du rendement quantique intrinsèque  $\eta_i=0.4$  du NE (équation (5.15)). Ainsi que l'effet de  $\eta_i$  sur les rendements quantiques de ces pointes (équation (5.18)). Les résultats sont montrés dans le tableau ci-dessous.

Type de pointe	$\Gamma_{tot}$	q ( $\eta_i=0.4$ )	q <sub>pointe</sub> ( $\eta_i=0.4$ )
Pointe polymère	1.02	0.41	0.205
Pointe à ouverture papillon	233	0.48	0.182
Pointe à ouverture circulaire Ø 60 nm	15	0.00128	6.2e-5
Pointe à ouverture circulaire Ø 220 nm	1.028	0.054	0.005

Comme nous pouvons le voir, l'ajout de  $\eta_i$  dans nos équations affecte le  $\Gamma_{tot}$  ainsi que q mais de manière différente selon les pointes. Il modifie, en accord avec l'équation (5.15), beaucoup le  $\Gamma_{tot}$  des pointes à ouverture papillon et circulaire de diamètre 60 nm

---

et très peu les deux autres. Inversement, il change beaucoup (du fait de la définition du rendement quantique) le  $q$  des pointes polymère et à ouverture circulaire de diamètre 220 nm mais peu celui des autres.

Ainsi, nous voyons que les temps de vie des états excités d'un NE sont réduits pour les pointes à ouverture papillon et circulaire de diamètre 60 nm par rapport à celui-ci dans le vide, respectivement d'un facteur 233 et 15. Mais ce temps de vie est très peu changé pour les pointes polymère et à ouverture circulaire de diamètre 220 nm. De plus, le meilleur rendement quantique total se trouve être celui de la pointe BNA, devant celui de la pointe polymère, mais le rendement quantique dans la pointe reste meilleur pour la pointe polymère du fait, comme auparavant, du meilleur taux de collection de cette dernière ( 50% contre 19 % pour la pointe BNA). Les pointes à ouverture circulaire ont pour leur part un rendement quantique très mauvais. L'ensemble de ces résultats démontre que la géométrie de la BNA joue un rôle central dans l'interaction de la pointe du même nom avec un NE. En outre, ses propriétés ne peuvent être expliquées uniquement par la surface ouverte en bout de pointe puisque le comportement de la pointe à ouverture circulaire de 220 nm de diamètre est très différent.

Intéressons nous maintenant à l'augmentation du taux de fluorescence ( $\eta_F$ ) de ces différentes pointes.

### **Augmentation du taux de fluorescence**

#### **Mode saturé**

Étudions tout d'abord le mode saturé pour lequel ce taux est défini par l'équation (5.16). Comme mentionné auparavant, il est calculé dans tout l'espace et à l'intérieur de chaque pointe. Les résultats obtenus pour ce mode d'excitation et pour chaque pointe

---

sont donnés dans le tableau ci-dessous.

Type de pointe	$\eta_F$	$\eta_{F_{pointe}}$
Pointe polymère	1.05	0.53
Pointe à ouverture papillon	281	107
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 60 nm	0.048	0.00246
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 220 nm	0.139	0.0128

Premièrement, le  $\eta_F$  total de la pointe BNA apparaît être très supérieur a ceux des autres pointes, d'un facteur 267 par rapport à la pointe polymère, 2021 pour la pointe à ouverture de diamètre 220 nm et 5854 pour la pointe à ouverture de diamètre 60 nm. Deuxièmement, le  $\eta_F$  à l'intérieur de la pointe est, quant à lui, très bon pour la pointe BNA, supérieur d'un facteur 200 par rapport à la pointe polymère, 8281 pour la pointe à ouverture de diamètre 220 nm et 43089 pour la pointe à ouverture de diamètre 60 nm. Ces valeurs élevées de  $\eta_F$  pour la BNA sont dues, comme dans la partie précédente, à la valeur élevée de  $\Gamma_r$  liée au très fort confinement du champ électrique à l'intérieur du gap de la BNA. De plus, la surface des ouvertures ne semble pas être le facteur déterminant dans l'augmentation du taux de fluorescence, c'est donc bien encore une fois l'effet d'antenne qui prédomine sur cette augmentation en mode saturé.

Nous avons dès lors un système qui, en mode saturé, permet d'obtenir une très bonne augmentation du taux de fluorescence à l'intérieur même de la pointe en vue d'une collection par la fibre. Ce taux est d'ailleurs supérieur à celui en présence du substrat favorisant un meilleur couplage pour un dipôle placé en bout de pointe sans la présence de substrat.

### Mode non-saturé

Considérons maintenant le cas non saturé. Comme précédemment, l'augmentation du taux de fluorescence est régie par l'équation (5.17). Pour cette étude  $I_e$  et  $I_0$  ont été calculés en considérant un éclairage par faisceau gaussien à la longueur d'onde de 808 nm,

focalisé sur l'emplacement du dipôle, avec un waist (largeur à  $1/e^2$  en intensité) de  $1.5 \mu\text{m}$ . Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau ci dessous.

Type de pointe	$\eta_F$	$\eta_{F\text{pointe}}$
Pointe polymère	0.289	0.146
Pointe à ouverture papillon	3	1.125
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 60 nm	9.53e-4	4.9e-05
Pointe à ouverture circulaire $\emptyset$ 220 nm	0.195	0.0175

Il apparaît que la seule pointe dont le taux de fluorescence a augmenté par rapport au dipôle dans le vide est la pointe BNA, les trois autres ayant un  $\eta_F$  inférieur à 1, ce résultat peut s'expliquer par le fait que la pointe à nano-ouverture papillon augmente un peu l'intensité excitatrice à l'endroit du dipôle alors que les autres pointes la diminue. En outre, les deux pointes à ouverture circulaire, du fait d'un mauvais rendement quantique et d'une forte diminution de l'intensité de l'excitation, inhibent complètement ce taux de fluorescence. Elles seront donc à écarter définitivement comme candidates possibles pour le couplage de l'information d'un NE à un mode de fibre optique.

Notons que le fait que  $\eta_{F\text{pointe}}$  théorique de la pointe BNA est supérieur à 1, correspond à une pointe qui collectera plus de fluorescence qu'un dipôle dans le vide n'en émet dans tout l'espace. Ce qui fait d'elle un système somme toute meilleur que les systèmes de collection champ lointain à objectif de microscope qui ne collectent qu'environ 1 % de la fluorescence émise par le NE [23, 157].

En conclusion de ces études, il apparaît que chaque pointe possède des propriétés qui lui sont propres. La pointe polymère semble posséder une très bonne collection, jusqu'à 50 % de l'énergie émise par un dipôle placé à son extrémité, mais celle-ci influe très peu sur le temps de vie de l'état excité du NE (inversement proportionnel à  $\Gamma_{tot}$ ) de même que sur le taux de fluorescence de l'émetteur, elle ne sera donc pas adaptée pour cette dernière application.

En ce qui concerne la pointe BNA, nous avons vu qu'elle pouvait donner un bon facteur

de collection de l'énergie rayonnée en champ lointain (38 %), mais qu'elle présente une absorption assez forte (50 % de l'énergie émise par le dipôle). Par contre elle s'est avérée influencer fortement sur le temps de vie de l'état excité d'un NE (avec notamment un  $\Gamma_{tot}$  de 233) et sur  $\eta_F$  en mode saturé. De même, malgré une faible augmentation de la fluorescence en mode non-saturé, celle-ci collecte plus que la fluorescence totale émise par un dipôle dans le vide, soit 112,5 %.

Enfin, les deux pointes à ouverture circulaire ne semblent pas adaptées à ce schéma de collection avec seulement 0.012 % de l'énergie collectée dans le meilleur des cas. Elles ne semblent pas non plus adaptées à la réduction du temps de vie, avec un maximum de 15 pour le  $\Gamma_{tot}$  alors que le taux de fluorescence du NE semble totalement inhibé par ce type de pointe.

Ces études nous ont donc montré les avantages et les inconvénients de ces différentes pointes, ce qui nous sera très utile pour la suite de notre travail.

### 6.1.2 Etude expérimentale

Dans cette étude, la partie collection et notamment les pourcentages de collection des différentes pointes ainsi que le couplage de leur information au mode de fibre ne seront pas traités. En effet pour que cette étude soit possible expérimentalement, il nous aurait fallu être sûr qu'une seule BQ se trouve en bout de pointe, et cela pour chaque sonde. Malheureusement par manque de temps, nous n'avons pas eu la possibilité de monter cette expérience.

Par contre, l'étude du temps de vie des boîtes quantiques ne nécessite pas l'existence d'un seul émetteur. En effet, statistiquement les émetteurs auront tous les mêmes probabilités d'émission de photon, dès lors la courbe représentant le temps de vie de l'état excité du NE pourra être construite qu'il y ait un ou plusieurs NE en bout de pointe. A noter que ceci est vrai uniquement s'il n'existe pas couplage entre les NE. Nous revien-



drons sur ce point par la suite. Ces temps de vie seront calculés pour des BQs placées en bout des trois mêmes sondes : pointe BNA, pointe à nano-ouverture circulaire et pointe diélectrique en polymère.

### **Type de NE utilisé : la BQ**

Lors de nos expériences, plusieurs types de NE auraient pu être utilisés pour interagir avec nos différentes pointes (molécules uniques, boîtes quantiques, nano-cristaux de diamant à centres colorés, nanoparticules dopées terre rare...), nous avons fait le choix d'utiliser des BQs.

Une BQ est un nano-cristal de matériau semi-conducteur, se comportant comme un puits de potentiel confinant les électrons et les trous dans les trois dimensions de l'espace sur une région de quelques nanomètres. Ce confinement permet de reproduire à l'intérieur de la BQ un comportement de quantification des niveaux d'énergie comme pour un atome, comportement souvent simplifié par un système à deux niveaux comme mentionné au chapitre précédent.

Les BQs utilisées dans nos expériences sont produites par la société *Evident Technologies*, elles sont constituées d'un cristal à croissance colloïdale de sulfure de plomb (PbS), de diamètre 5 nm entouré d'un ligand portant le tout à un cristal de 9 nm de diamètre. ces BQs absorbent l'ensemble des longueurs d'onde inférieures à 1500 nm (leur spectre d'absorption est montré sur la figure 6.2) et réémettent autour de 1450 nm avec une largeur à mi-hauteur de 172 nm (leur spectre d'émission est montré sur la figure 6.3). Les caractéristiques intrinsèques fournies par le constructeur de ces BQs portent sur leur temps de vie qui est estimé entre 50 et 200 ns et sur le rendement quantique intrinsèque qui est, comme nous l'avons vu précédemment, compris entre 30 et 50 %. ces BQs sont vendues en suspension dans du toluène stocké dans une petite fiole hermétique de quelques centilitres afin de les conserver au maximum.

---

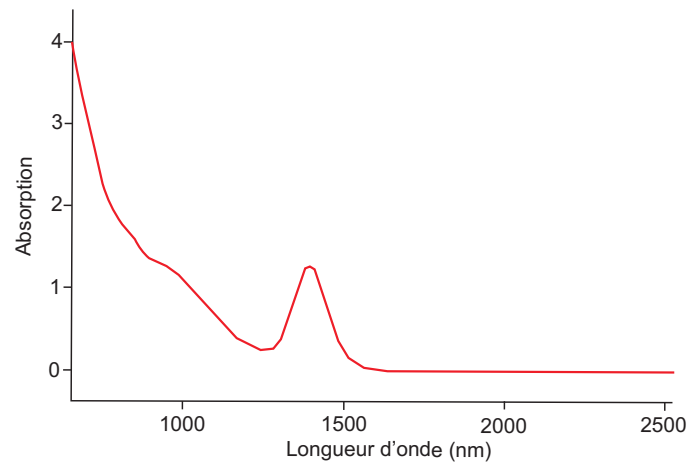


FIGURE 6.2 – Spectre d'absorption des BQs utilisées en manipulation.

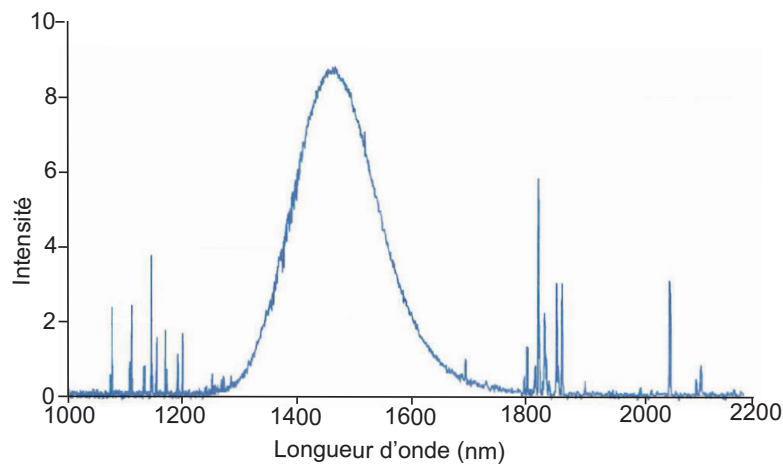


FIGURE 6.3 – Spectre d'émission des BQs utilisées en manipulation.

Une fois toutes ces caractéristiques prises en compte l'étape suivante consistait à déposer quelques unes de ces BQs en bout de pointe champ proche.

### Dépôt de BQs en bout de pointe

La façon de déposer les BQs à l'extrémité de la sonde a été le fruit d'un pur hasard. En effet, après avoir réfléchi longtemps sur la manière de procéder sans vraiment trouver une solution optimale, nous avons décidé de tester le fonctionnement de notre compteur de photons que nous venions de recevoir. Ainsi, le premier test que nous avons effectué

consistait à déposer une goutte de toluène contenant des millions de BQ sur une lame de verre et à approcher la sonde jusqu'au contact avec la goutte afin de mettre en évidence l'émission des BQs. Le résultat de ce test a été concluant en ce sens où des centaines de photon étaient comptés par seconde. Mais, à notre grande surprise, le compteur de photon continuait à recevoir de l'énergie lorsque la pointe fut écartée de la surface de l'échantillon et que ce dernier fut complètement retiré.

Plusieurs explications étaient alors possibles, la première bien sûr était que des BQs étaient restées accrochées au bout de la pointe. La deuxième possibilité envisagée était le fait que le polymère utilisé dans la fabrication de la pointe pouvait lui-même "fluorescer" dans la gamme de sensibilité du compteur de photons. Une troisième hypothèse a aussi été émise mettant en défaut le filtrage réalisé à l'aide d'un notch du rayonnement laser pompe éclairant les BQs. En effet, il suffit que des photons incidents de ce laser émettant à  $\lambda = 808 \text{ nm}$  puissent parvenir au détecteur (peu sensible à cette longueur d'onde) pour donner lieu à un signal parasite.

Ces deux dernières possibilités furent rapidement écartées à travers une simple expérimentation mettant en évidence l'absence complète de signal détecté dans le cas d'une sonde "vierge" n'ayant jamais été mise en contact avec les BQs. Ainsi, seule l'hypothèse de la présence de BQ restées accrochées à la pointe est tangible. Par la même, nous avons validé le bon fonctionnement du filtre notch et la non fluorescence du polymère constituant la pointe.

En conclusion, nous avons mis au point une technique assez simple permettant de déposer des BQs à l'extrémité d'une sonde. C'est cette méthode qui sera utilisée par la suite pour les trois types de sondes polymères avec ou sans ouverture (circulaire et BNA). Néanmoins, il est à signaler que dans le cas de sonde métallisée, un déplacement latéral (un scan) de la sonde est nécessaire afin de forcer les QD à pénétrer dans l'ouverture. Le nombre de BQ déposées dépendra fortement du temps total de scan. Typiquement, un

---

déplacement sur 100nm, correspondant à la plus petite course possible à travers l'électronique de balayage du microscope, est pratiqué permettant d'avoir un signal détectable par le compteur de photons.

### Montage expérimental

Celui-ci ressemble par certains aspects à ce qui a été précédemment présenté dans la première partie du manuscrit. Ainsi, nous retrouvons la partie excitation par le laser et tout ce qui concerne le microscope inversé et de la tête SNOM comme il est indiqué sur la figure 6.4. Nous allons donc donner une liste des différents appareils utilisés :

- (a) le générateur Stanford (Model DG535) dont le rôle est de délivrer des signaux carrés (allant de 1 kHz à 999 kHz) décalés dans le temps.
- (b) Un générateur de pulse (Hewlett Packard 8082A pulse generator) délivrant des impulsions électroniques alimentant la diode laser.
- (c) La diode laser, elle-même, émettant à  $\lambda = 808 \text{ nm}$  (VPSL0808-100X9B) pour exciter les BQ.
- (d) la partie microscope inversé, pointe et tête SNOM comme décrite dans la partie 1 de ce manuscrit.
- (e) Le compteur de photons (AUREA Technologie SPD A avec une sensibilité de 5% et des portes de détection de 100 ns) sur lequel est branchée l'extrémité de la fibre optique après filtrage du signal transmis par un notch (FB 810-10).
- (f) un corrélateur relié à un ordinateur permettant de reproduire la courbe de décroissance de l'émission des BQ.

Le principe de l'expérience est le suivant : un pulse laser très court est envoyé sur la pointe contenant les BQs pour les exciter, celles-ci vont, après un certain temps, émettre un photon. Ce dernier, s'il est collecté par la pointe, sera guidé après filtrage par le notch jusqu'au compteur de photons qui le détectera. Par la suite, si nous parvenons à connaître le temps entre le pulse laser et l'émission du photon par l'émetteur et que nous reprodui-

---

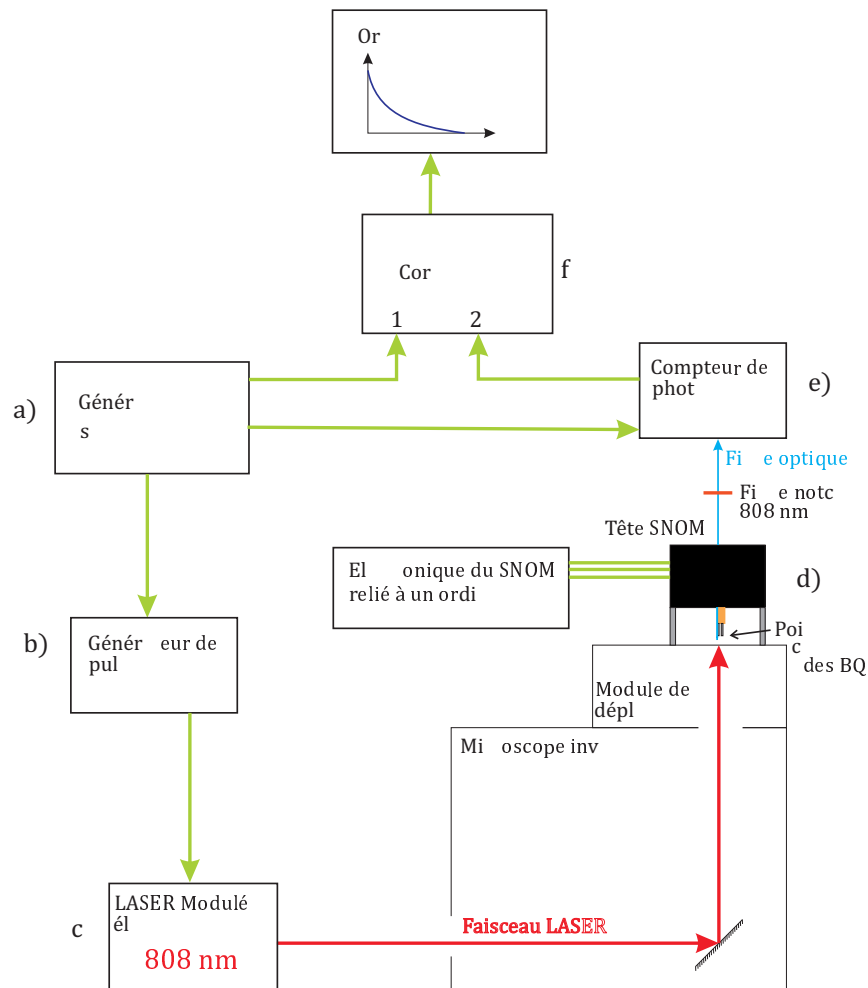


FIGURE 6.4 – Schéma du montage utilisé pour caractériser le couplage des BQs aux pointes champ proche.

sons cette expérience de nombreuses fois, il nous sera possible de déterminer le taux de décroissance total des BQs par la construction de la courbe donnant le nombre de photons en fonction du temps.

L'expérience va se dérouler de la façon suivante : le générateur stanford délivre un signal carré à une fréquence définie par l'utilisateur (dans notre cas 300 kHz), à la fois au générateur de pulse et au compteur de photon. Le premier génère un pulse électrique qui sera envoyé vers le laser afin qu'il délivre un pulse optique (d'environ 6-7 ns). Le compteur de photons, quant à lui, va synchroniser l'ouverture d'une "porte" de détection (de 100 ns dans notre cas) avec le signal émis par le générateur. Cependant, un temps non négligeable

va se dérouler entre l'émission du signal par le générateur et la détection de l'émission par les BQs. Ceci correspond en effet au temps de propagation des signaux électriques puis optiques jusqu'au compteur de photons, temps estimé à plusieurs dizaines de nanosecondes. Pour rattraper ce laps de temps, nous imposons au générateur stanford de décaler les deux signaux envoyés vers le compteur de photons et vers le générateur de pulse. Ce décalage est évalué expérimentalement en le faisant varier jusqu'à ce que le compteur de photons détecte un signal non nulle. Dans notre cas, un décalage de 85 ns est nécessaire.

Le dernier élément du banc expérimental à intervenir dans la détection du signal est le corrélateur. Celui-ci possède deux entrées : un start et un stop et la mesure fournie correspond au décalage entre les deux signaux. Dans notre cas, sur le start est placée une des sorties du générateur stanford (la même que celle du compteur de photons) et sur le stop nous avons branché la sortie TTL (transistor-transistor logic) du compteur de photons. De cette manière nous pouvons mesurer le temps entre l'impulsion laser et la détection du photon et donc ainsi reproduire la courbe de l'émission de fluorescence des BQs en fonction du temps et en déduire le taux de décroissance de l'état excité des BQs.

### **Temps de vie des états excité des BQs en bout de pointe**

De manière à pouvoir évaluer l'effet de la BNA en bout de sonde de microscopie optique en champ proche sur le temps de vie de l'état excité des BQ, nous allons comparé son comportement à celui de deux autres pointes. Une des pointes est la sonde métallisée à ouverture circulaire de 90-100 nm de diamètre et la deuxième une pointe diélectrique nue en polymère. Afin que la comparaison ait un sens, les trois pointes doivent avoir les mêmes dimensions à savoir une longueur de 30  $\mu\text{m}$ , un rayon de courbure de 500 nm, obtenues par polymérisation à l'extrémité clivée d'une fibre SMF-28e (monomode à 1550nm), Une couche d'aluminium d'épaisseur 100nm est utilisée dans le cas des deux pointes métallisées comme il a été précédemment mentionné dans ce manuscrit.

---

## 1. Etude préliminaire

Il s'agit dans cette partie de mettre en évidence l'existence de la fluorescence des BQs ainsi que son comportement en fonction de la puissance et de la polarisation du faisceau incident. Cette partie a donc été effectuée pour la sonde BNA parce que l'effet de polarisation et l'exaltation du champ local sont propres au comportement de l'antenne. Considérons donc, la pointe BNA dont l'image MEB est montrée sur la figure 6.5.

Tout d'abord nous avons cherché à savoir si la fluorescence des BQs dépendait de la polarisation du laser excitateur incident, ce qui indiquerait un effet de polarisation induit par la géométrie, et donc dû aux propriétés intrinsèques de l'antenne. Pour cela nous avons éclairé la BNA à l'aide d'un faisceau dont la polarisation linéaire était contrôlée à travers un ensemble polariseur-lame demi-onde. Lors de cette expérience, la puissance du laser a été fixée à environ 1 mW garantissant une valeur sous le seuil de saturation des BQs. Les résultats de cette étude sont montrés sur la figure 6.6. Comme nous pouvons le voir, nous avons une forte variation de la fluorescence en fonction de la polarisation, ce qui démontre un effet d'antenne sur cette dernière.

En effet, étant en dessous du seuil de saturation des BQs (nous verrons par la suite où il se situe exactement), l'augmentation du taux de fluorescence est définie par l'équation (5.17), ce qui signifie qu'elle ne dépendra que du rendement du système et de l'augmentation de l'intensité électrique à l'endroit de la BQ. Or il a été calculé et démontré théoriquement que, grâce à l'effet d'antenne, le rendement quantique et l'intensité électrique au voisinage de la BNA sont augmentés même en dehors de la résonance de cette dernière (ici  $\lambda=808\text{nm}$  alors que la résonance vers  $\lambda=1300\text{nm}$ ). Ainsi, le taux de fluorescence est seulement augmenté dans le cas d'une polarisation parallèle aux ailes métalliques de la BNA comme montré sur le schéma de la figure

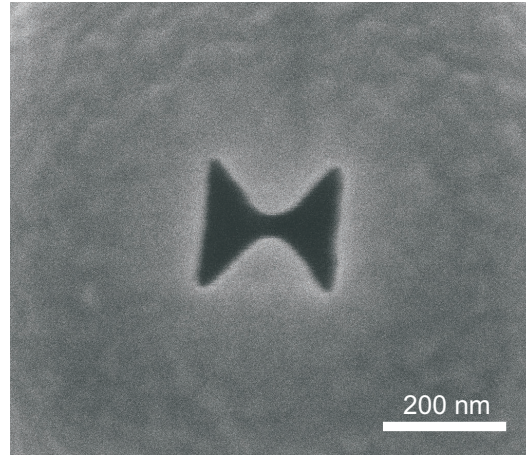


FIGURE 6.5 – Image MEB de la nano-ouverture papillon en bout de pointe pour la microscopie en champ proche utilisée en manipulation.

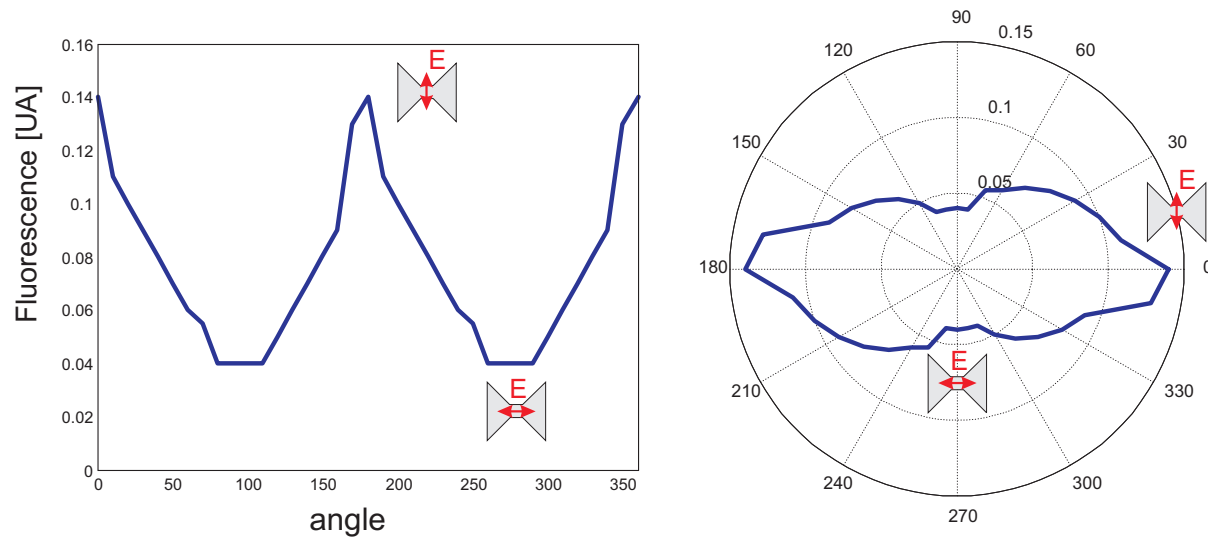


FIGURE 6.6 – Evolution de la fluorescence collectée par la pointe BNA en fonction de la polarisation incidente du laser excitateur.

6.7. Ceci est en parfaite concordance avec les résultats expérimentaux de la figure 6.6.

Ensuite, pour déterminer la puissance de saturation des BQs, nous nous sommes placés dans la polarisation qui permettait d'avoir le maximum de fluorescence (parallèle aux ailes métalliques du papillon), puis nous avons augmenté progressivement la puissance émise par le laser. La fluorescence collectée par la pointe en fonction de la puissance émise par le laser (en mode continu) est représentée sur la figure 6.8. Comme nous pouvons le voir, à partir d'une puissance émise de 32 mW, la



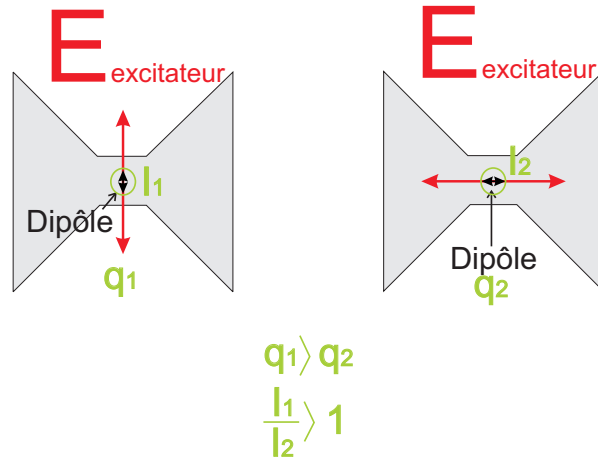


FIGURE 6.7 – Schéma représentant les rendements quantiques et intensités en fonction de la polarisation incidente du laser excitateur.

fluorescence commence à se stabiliser pour devenir constante, ce qui caractérise une excitation sous saturation des BQs. Cette étude n'a pas une importance quantitative, puisque la saturation dépendra de nombreux facteurs telles que la polarisation, la focalisation du faisceau laser sur la pointe, la pointe considérée, la position des BQs dans la nano-ouverture. Néanmoins, elle nous renseigne sur le fait qu'il sera possible de travailler avec ces émetteurs dans les deux régimes.

Notons que si l'on maintient le laser avec une puissance supérieure à  $30 \mu\text{W}$ , le régime de saturation ne va pas perdurer longtemps et une décroissance de la fluorescence sera observée. Nous avons attribué ce phénomène à un possible clignotement (blinking) des boîtes quantiques utilisées [158], c'est-à-dire que celles-ci seront dans un état qui ne leur permet ni d'absorber ni d'émettre de photons pendant un temps pouvant aller jusqu'à plusieurs secondes, d'où une diminution du signal de fluorescence.

Le temps de vie étant défini par la largeur de la courbe de décroissance à  $1/e$ , il suffira d'une exploitation graphique de cette courbe afin de remonter à cette valeur. Malheureusement, ceci n'est pas parfaitement valable dans notre cas. En effet, l'ex-

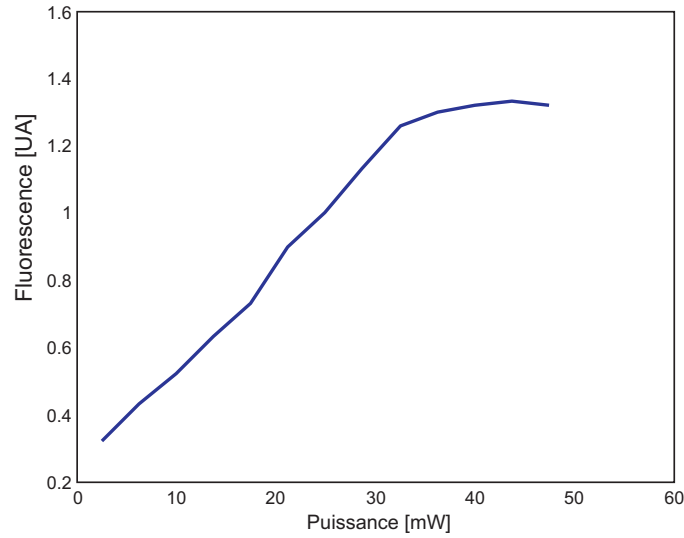


FIGURE 6.8 – Graphique représentant la fluorescence en fonction de la puissance du laser excitateur en mode continu.

citation temporelle étant impulsionnelle de largeur non nul, la courbe expérimentale de décroissance est le produit de convolution de la réponse temporelle des BQs avec l'excitation. Une déconvolution du signal expérimental par la forme de l'impulsion incidente mesurée sur un oscilloscope est alors nécessaire.

## 2. La pointe polymère

L'étude du temps de vie de l'état excité des BQs a été réalisée grâce à la méthode et au matériel présentés précédemment.

La courbe de décroissance pour cette pointe est montrée sur la figure 6.9. Le temps de vie obtenu grâce à cette courbe après déconvolution par le signal pompe est de  $44.5 \text{ ns} \pm 2 \text{ ns}$ . Cette valeur est indépendante de la direction de polarisation incidente mais elle est plus faible que les valeurs annoncées par le commercial et qui se situe dans une fourchette entre 50 et 200ns. La comparaison avec la pointe à BNA est rendue possible grâce au fait que  $\Gamma_{tot} \simeq 1$  dans ce cas (1.05).

## 3. La pointe à nano-ouverture circulaire

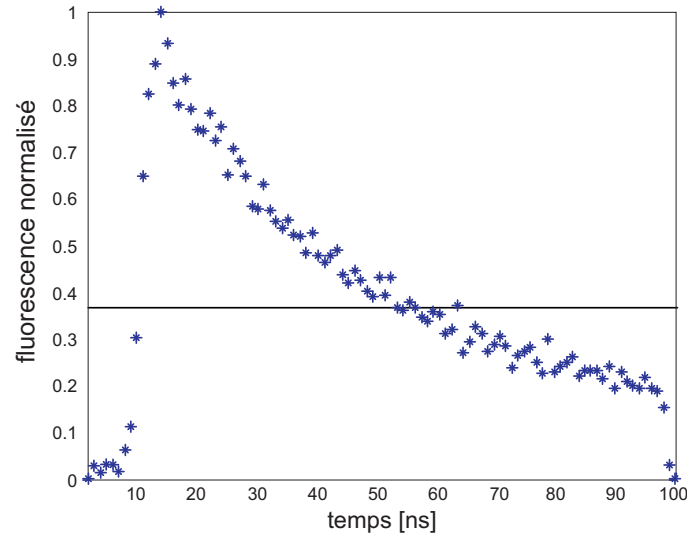


FIGURE 6.9 – Courbe de décroissance des BQs en bout de pointe diélectrique polymère.

La figure 6.10 présente la courbe de décroissance obtenue pour des BQs placées au bout de la pointe à nano-ouverture circulaire de diamètre 90-100 nm. Nous obtenons un temps de vie quasi-indépendant de la polarisation de l'ordre de  $21 \text{ ns} \pm 1 \text{ ns}$ . Cette valeur, bien inférieure à celle donnée par le fabricant, est conforme à la théorie qui prédit une réduction du temps de vie correspondant à un  $\Gamma_{tot} = 1.5 - 2 > 1$ . Le temps de vie reste moins réduit que ce qui est prévu par la théorie (facteur 2 au lieu d'un facteur 15). Cela est dû à la valeur du diamètre de l'ouverture qui est supérieure à celle considérée dans les simulations numériques (60 nm).

#### 4. La pointe BNA

Dans ce cas de sonde, nous nous attendons à ce que la réponse dépende fortement de la direction de polarisation de l'onde incidente. La figure 6.11 montre les courbes de décroissance des BQs pour deux directions différentes de la polarisation du faisceau incident éclairant la pointe BNA. Il s'agit évidemment des directions parallèle et perpendiculaire aux ailes métalliques du papillon. Le temps de vie est aussi pré-

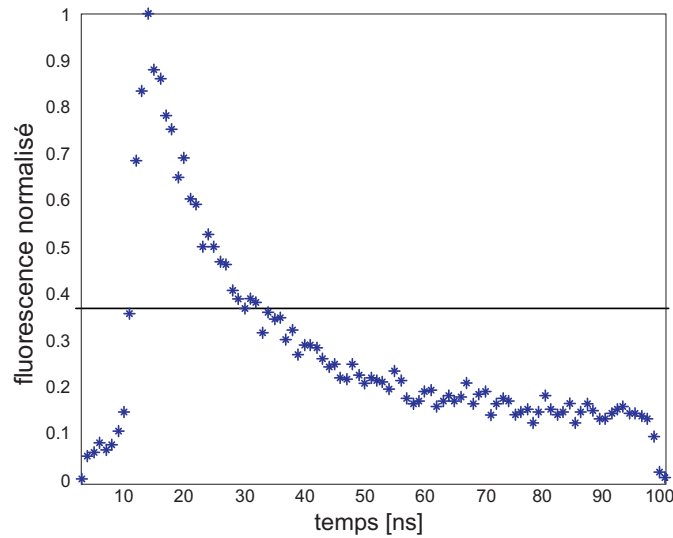


FIGURE 6.10 – Courbe de décroissance des BQs en bout de pointe à nano-ouverture circulaire.

senté, sous la forme d'un diagramme de rayonnement, en fonction de la direction du champ électrique incident lorsque celui-ci effectue une rotation sur  $180^\circ$ . Comme nous pouvons le voir, le temps de vie des états excités des BQs dépend fortement de la polarisation du faisceau incident confirmant une fois de plus un effet d'antenne.

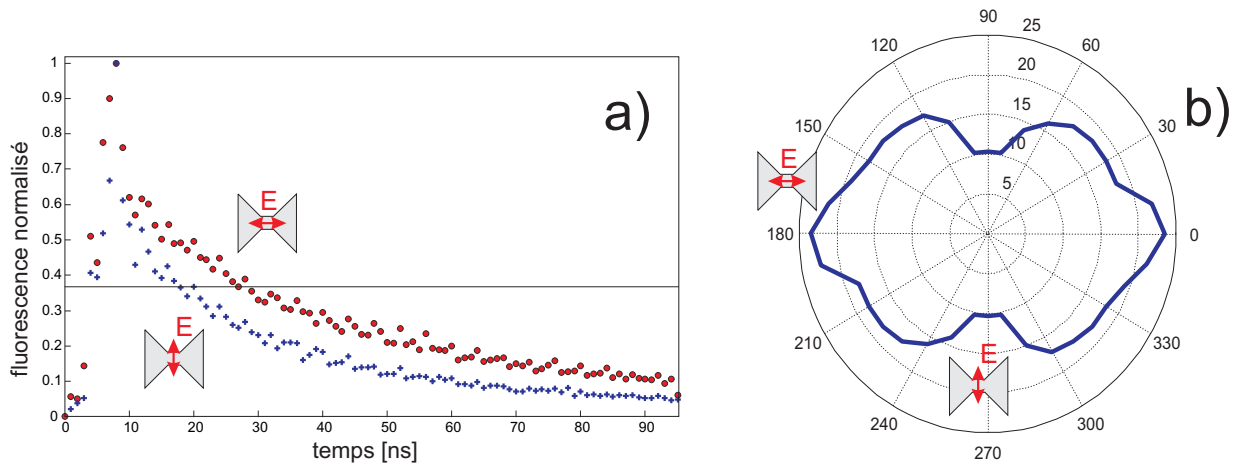


FIGURE 6.11 – a) courbe de décroissance en fonction de la polarisation incidente, b) temps de vie de l'état excité en fonction de la polarisation incidente.

Ainsi, l'exploitation des résultats expérimentaux fournit un temps de vie minimum de  $10.3 \text{ ns} \pm 1 \text{ ns}$  pour la polarisation parallèle aux ailes métalliques du papillon (contre 50 à 200 ns d'après le constructeur) et au maximum un temps de vie d'envi-

ron  $23.5 \text{ ns} \pm 1 \text{ ns}$  pour la polarisation perpendiculaire à la nano-antenne. A noter que ces résultats ont été reproduits par plusieurs expériences et qu'ils sont indépendants de la puissance du laser. En effet, nous avons constaté expérimentalement que le laser utilisé ne permettait pas d'atteindre le mode de saturation en mode impulsionnel. Ce résultat confirme le fait que s'il existe un couplage entre les boîtes quantiques en bout de pointe (qui pourrait influencer sur le temps de vie), celui-ci n'est pas détectable par nos mesures et donc que ces boîtes peuvent-être considérées comme indépendantes les unes des autres.

En conclusion, une réduction significative (facteur 4 par rapport à la sonde polymère et facteur 2 par rapport à la sonde à ouverture circulaire) du temps de vie est obtenue dans le cas de la BNA. De plus, ce temps de vie change en fonction de la polarisation incidente sur la pointe, traduisant un fort effet d'antenne sur ce dernier. Le bilan de la pointe BNA est donc globalement positif malgré le fait que les résultats restent en deçà de ce que prévoit la théorie. Plus particulièrement, le taux de fluorescence mesuré expérimentalement est exalté d'un facteur 10 par rapport à celui d'une sonde conventionnelle à ouverture circulaire.

## 6.2 Etude du couplage entre nano-émetteur et mode de fibre optique

Dans le but d'optimiser le couplage de l'énergie rayonnée par la BNA dans la pointe avec un mode de fibre optique permettant de la véhiculer en champ lointain là où se trouve le détecteur. L'étude qui suit va donc consister à concevoir une sorte d'antenne cornet pour le signal émis par la BNA. Cette étude sera donc différente de ce qui a été effectué jusqu'à présent car elle ne fait pas intervenir directement des notions de champ proche ni de théorie quantique sur l'émission de NE.

---

### 6.2.1 Pointes polymères seules

Dans cette partie, le rendement quantique intrinsèque  $\eta_i$  du dipôle sera considéré égal à un. Seul le couplage de l'énergie rayonnée par le dipôle à la pointe sera étudié.

L'ensemble des simulations effectuées jusque là a fortement augmenté nos connaissances sur les propriétés d'un NE au contact de différentes structures, résonnantes ou non résonnantes, métalliques ou diélectriques. Le couplage de l'énergie émise par un NE à un mode de fibre optique via une pointe pour la microscopie champ proche n'a pas été spécifiquement étudié même si celui-ci était déjà pris en compte par ces simulations. En effet, c'est la partie conique de la pointe qui jouait ce rôle de médiateur entre le champ rayonné et la fibre. Il serait donc intéressant d'étudier ce couplage en fonction de la géométrie de cette partie de la sonde. Rappelons-nous du très bon couplage qu'il existait entre le NE et la pointe polymère nue montrant un taux de collection de 50 % de l'énergie émise par le dipôle. C'est ce résultat qui a motivé l'étude présentée dans cette partie.

L'ensemble des simulations effectuées jusque là ont fortement augmenté nos connaissances sur les propriétés d'un NE au contact de différentes structures, résonnantes ou non résonnantes, métalliques ou diélectriques. Ainsi que sur le couplage de l'énergie émise par un NE à un mode de fibre optique via une pointe pour la microscopie champ proche. En particulier nous avons été surpris du très bon couplage qu'il existait entre le dipôle et la pointe polymère nue. En effet celle-ci montrait une collection de 50 % de l'énergie émise par le dipôle. Ce résultat a motivé l'étude présentée ci-dessous, où nous nous sommes intéressés aux capacités de collection d'une telle pointe, notamment l'influence du rayon de courbure de l'extrémité de la pointe sur cette collection, puisque se faisant la pointe collectera plus de rayonnement du dipôle. Les caractéristiques des simulations effectuées sont données sur la figure 6.12, n'ayant plus accès au supercalculateur BlueGene, ces simulations ont été réduites en taille pour pouvoir être effectuées à Besançon. Pour cela nous avons fait l'hypothèse que l'énergie collectée par le bout de la pointe, du fait de la

---

grande différence d'indice entre le polymère et l'air, sera guidée jusqu'à la fibre optique. Nous avons donc considéré, que la puissance mesurée quelques microns après l'apex était la puissance guidée par la pointe avant couplage au mode de fibre optique, cette hypothèse fut confirmée par la suite.

Les simulations schématisées sur la figure 6.12 sont effectuées en considérant une fenêtre de calcul de  $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$  (XYZ), avec un maillage fin de 5 nm, autour de l'extrémité de la pointe (volume de  $400\ \text{nm} \times 400\ \text{nm} \times 750\ \text{nm}$ ). Le reste de la simulation possède un maillage de 25 nm. Le dipôle électrique est placé à 10 nm devant la pointe ayant un demi-angle de  $7.8^\circ$  et un rayon de courbure variant de 500 nm à  $1.5\ \mu\text{m}$  par pas de 250 nm.

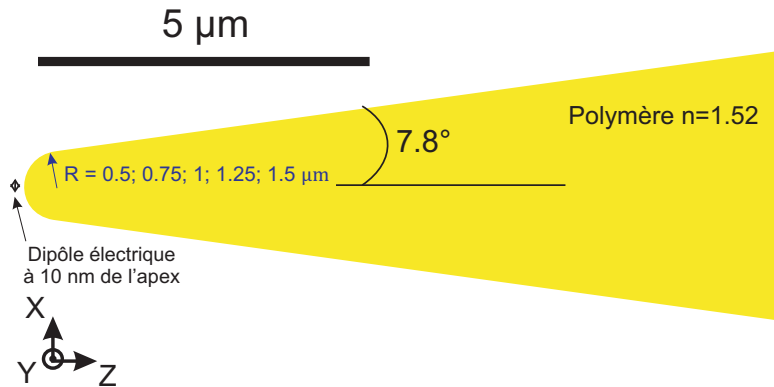


FIGURE 6.12 – Schéma de la pointe polymère, excitée par un dipôle placé à 10 nm de l'apex, pour des rayons de courbure de 0.5, 0.75, 1, 1.25,  $1.5\ \mu\text{m}$ .

Les résultats donnant l'augmentation du taux de décroissance total  $\Gamma_{tot}$  ( $P_{tot}/P_0$ ), du taux de décroissance dans la pointe  $\Gamma_{rpointe}$  ( $P_{rpointe}/P_0$ ) et du taux de collection  $q_{pointe}$  ( $P_{rpointe}/P_{tot}$ ) en fonction du rayon de courbure du bout de la pointe sont montrés dans le tableau ci-dessous. Comme nous pouvons le voir,  $\Gamma_{tot}$  et  $q_{pointe}$  augmentent avec le rayon, atteignant respectivement un maximum de 1.225 et de 64 % pour un rayon de  $1.5\ \mu\text{m}$ . l'augmentation de  $\Gamma_{tot}$  est due au changement dans l'environnement du dipôle et celle de  $q_{pointe}$  est liée au fait que lorsque le rayon de courbure augmente, une partie du rayonnement du dipôle qui était perdue latéralement se trouve collectée et guidée à

travers la pointe. Cette pointe semble donc bien posséder des propriétés exceptionnelles de collection qu'il serait possible d'optimiser.

Rayon de courbure	$\Gamma_{tot}$	$\Gamma_{rpointe}$	$q_{pointe}$
0.5 $\mu\text{m}$	1.025	0.455	0.44
0.75 $\mu\text{m}$	1.120	0.591	0.53
1 $\mu\text{m}$	1.175	0.680	0.58
1.25 $\mu\text{m}$	1.206	0.740	0.61
1.5 $\mu\text{m}$	1.225	0.790	0.64

En revanche, l'énergie collectée par la pointe n'est que partiellement guidée par la fibre optique. En effet, seule l'énergie couplée au mode de fibre pourra se propager et le reste sera rayonné à travers les flancs ou réfléchi (ressort de la pointe) donc perdu. Pour connaître le pourcentage de l'énergie couplée au mode de fibre, nous avons effectué un calcul d'intégrale de recouvrement [159] entre la distribution du champ EM dans la pointe après propagation dans la partie conique et celle du mode de la fibre. Pour cela, nous avons dû reprendre tous nos calculs afin d'augmenter la taille de la fenêtre de calcul de telle sorte à considérer la totalité de la partie conique.

Un code BOR-FDTD (Body-Of-Revolution FDTD) est ainsi utilisé. Il est basé sur la discrétisation des équations de Maxwell en les exprimant dans la base des coordonnées cylindriques. Ce changement de système de coordonnées permet de simplifier les calculs dans le cas où la structure considérée admet une symétrie de révolution autour d'un axe (symétrie cylindrique comme pour notre pointe). Dans ce cas, la dépendance du champ EM par rapport à l'angle azimuthal est analytique et un calcul 3D sera ramené à un problème 2D. Ceci permet de considérer des structures de très grandes dimensions (jusqu'à une centaine de microns de long).

Ainsi, la distribution du champ EM calculé par FDTD est utilisée pour le calcul de l'intégrale de recouvrement. Les résultats obtenus dans le cas de notre fibre monomode



sont donnés dans le tableau ci-dessous en fonction du rayon de courbure de la pointe.

Rayon de courbure	0.5 $\mu\text{m}$	0.75 $\mu\text{m}$	1 $\mu\text{m}$	1.25 $\mu\text{m}$	1.5 $\mu\text{m}$
Pourcentage du couplage au mode	75.3	46.6	56.7	53.6	8.6

Comme nous pouvons le constater, le couplage au mode de fibre dépend fortement du rayon de courbure de la pointe. Cela s'explique par le fait que les pointes n'ont pas les mêmes longueurs étant donné que le demi angle de la pointe est constant. Le mode à l'intérieur de la pointe n'est alors pas le même pour chaque rayon de courbure. Ce phénomène est bien connu dans le domaine des hyperfréquences où l'antenne cornet utilisée - analogue à une fibre étirée en pointe pour le domaine de l'optique - doit avoir une longueur bien précise pour remplir son rôle. La répartition spatiale du mode en bout de pointe est donc différente pour chaque rayon et son couplage au mode de fibre se fait alors de manière différente. Une fois ces résultats insérés dans ceux donnés précédemment, nous obtenons le pourcentage de couplage au mode de fibre de l'énergie émise par le dipôle ( $q_{\text{mode de fibre}} = q_{\text{pointe}} \times \text{taux de recouvrement}$ ) donné dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	$q_{\text{mode de fibre}}$
0.5 $\mu\text{m}$	0.33
0.75 $\mu\text{m}$	0.25
1 $\mu\text{m}$	0.33
1.25 $\mu\text{m}$	0.33
1.5 $\mu\text{m}$	0.055

Comme nous pouvons le voir, il apparaît que les pointes de rayon de courbure de 500 nm, 1  $\mu\text{m}$  et 1.25  $\mu\text{m}$  couplent mieux l'énergie rayonnée par un dipôle au mode de la fibre, soit 1/3 de celle-ci. Cette valeur est très importante comparée aux 1% collectés par les dispositifs à objectif de microscope. Néanmoins, une partie de l'énergie rayonnée par le dipôle (estimée à plus de 30 %) est toujours perdue par propagation dans le sens opposé à la fibre. La question que nous nous sommes alors posée était de savoir s'il existait une solution pour re-diriger une partie de cette énergie dans la fibre. Une alternative est présentée dans le paragraphe suivant.

### 6.2.2 Pointes polymères couplées à un miroir

Dans cette partie, le rendement quantique intrinsèque  $\eta_i$  du dipôle sera également considéré égal à un. Seul le couplage de l'énergie rayonnée par le dipôle à la pointe sera étudié.

En nous inspirant du principe de l'antenne Yagi-Uda couramment utilisée dans le domaine des radio-fréquences [160] et récemment transposée au domaine du visible [5], nous avons alors eu l'idée d'utiliser un réflecteur permettant de re-diriger une partie de l'énergie dans la pointe. Ce réflecteur est constitué d'une couche métallique d'or d'épaisseur de 100 nm, placée à une distance particulière voisine du quart de la longueur d'onde (soit pour  $\lambda=1550$  nm, une distance d'environ 387 nm), de manière à ce que le champ réfléchi par le miroir soit en phase avec celui se trouvant au niveau du dipôle. Ceci a pour effet d'augmenter le champ EM se propageant dans la direction de la sonde et de re-diriger l'énergie dans cette même direction. Notons que dans le cas d'un métal réel dispersif (pénétration non nulle du champ EM dans le métal) tel que l'or, cette distance doit tenir compte de la profondeur de peau de la couche métallique ainsi que des pertes dues à la dissipation de l'énergie dans le métal. Pour autant, en considérant une distance de  $\lambda/4$  (relative au cas d'un métal parfaitement conducteur), l'erreur commise sur la valeur de la distance (estimée à 11nm ici) reste faible du fait de la grande conductivité de l'or à cette longueur d'onde. Notons que le déphasage introduit par la réflexion sur le métal n'est que de  $169^\circ$  dans le cas de l'or au lieu de  $180^\circ$  pour un conducteur parfait à la longueur d'onde  $\lambda = 1550$  nm.

L'étude numérique a été réalisée en considérant, comme précédemment, plusieurs rayons de courbure de l'apex de la pointe comme décrit sur la figure 6.13.

Comme mentionné précédemment, la puissance rayonnée à l'intérieur de la pointe est mesurée après 6  $\mu\text{m}$  de propagation. Les résultats pour  $\Gamma_{tot}$ ,  $\Gamma_r$ ,  $\Gamma_{rpointe}$ ,  $q$  et  $q_{pointe}$  sont montrés dans le tableau ci-dessous. Comme nous pouvons le voir,  $\Gamma_{tot}$  et  $q_{pointe}$  augmentent avec le rayon, atteignant respectivement un maximum de 1.36 et 88 % pour un

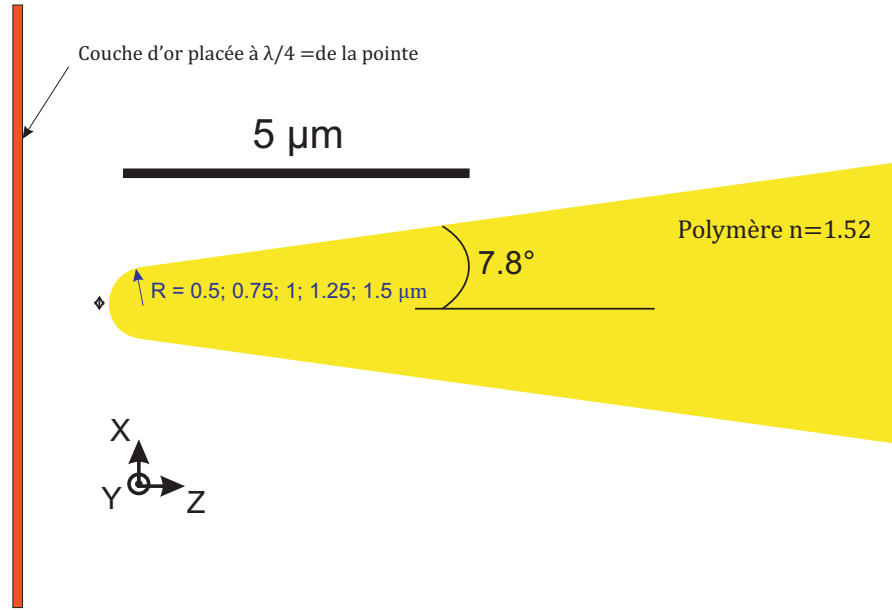


FIGURE 6.13 – Schéma de la pointe polymère, placée à  $\lambda/4$  d'un miroir, excitée par un dipôle placé à 10 nm de l'apex, pour des rayons de courbure de 0.5, 0.75, 1, 1.25, 1.5  $\mu\text{m}$ .

rayon supérieur ou égal à 1  $\mu\text{m}$ . De plus, nous constatons que l'apport du réflecteur est plus important pour les faibles rayons de courbures. Ceci est dû au fait que, dans le cas de grands rayons, la collection était assez efficace sans le réflecteur. A noter aussi qu'une petite partie de l'énergie rayonnée ( $< 0.01\%$ ) est absorbée par le métal ( $q > 0.99$  dans tous les cas).

Rayon de courbure	$\Gamma_{tot}$	$\Gamma_r$	$\Gamma_{rpointe}$	$q$	$q_{pointe}$
0.5 $\mu\text{m}$	1.13	1.12	0.89	0.991	0.79
0.75 $\mu\text{m}$	1.249	1.243	1.074	0.995	0.86
1 $\mu\text{m}$	1.305	1.295	1.148	0.992	0.88
1.25 $\mu\text{m}$	1.344	1.338	1.196	0.995	0.89
1.5 $\mu\text{m}$	1.36	1.350	1.197	0.993	0.88

Quand est-il pour le couplage au mode de fibre? Comme auparavant, une étude de recouvrement a été effectuée pour chaque rayon de courbure. Les résultats de cette étude sont montrés dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	0.5 $\mu\text{m}$	0.75 $\mu\text{m}$	1 $\mu\text{m}$	1.25 $\mu\text{m}$	1.5 $\mu\text{m}$
Pourcentage du couplage au mode	71.9	54.9	62.5	51.6	16.9

Comme auparavant, on constate que le couplage au mode de fibre dépend du rayon de courbure de la pointe, mais également de la présence du miroir puisque celui-ci change le rayonnement du dipôle. Le mode à l'intérieur de la pointe n'a alors plus la même distribution spatiale et son couplage au mode de fibre se fait donc de manière différente. Une fois ces résultats insérés dans ceux précédents, nous obtenons le pourcentage de couplage au mode de fibre de l'énergie émise par le dipôle ( $q_{mode\ de\ fibre}=q_{pointe} \times \text{couplage au mode}$ ) donné dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	$q_{mode\ de\ fibre}$
0.5 $\mu\text{m}$	0.57
0.75 $\mu\text{m}$	0.47
1 $\mu\text{m}$	0.55
1.25 $\mu\text{m}$	0.46
1.5 $\mu\text{m}$	0.15

Comme nous le voyons, ce sont les pointes de rayon de courbure de 500 nm et 1 $\mu\text{m}$  qui couplent le mieux l'énergie rayonnée par un dipôle à un mode de fibre, soit plus de la moitié de celle-ci. Néanmoins, ce couplage dépend aussi de la géométrie de la partie conique de la sonde. En effet, les trois paramètres que sont l'angle, la longueur et le rayon de courbure ne sont pas indépendants entre eux. Une étude plus complète, tenant compte de l'effet de chacun de ces paramètres, mériterait d'être entreprise.

En conclusion de cette étude, nous avons donc clairement un système très performant pour coupler l'énergie rayonnée par un dipôle au mode de la fibre optique collectrice. Par contre, cette performance ne se répercute pas sur le temps de vie de l'état excité d'un NE puisque  $\Gamma_{tot}$  est très peu augmenté.

L'ensemble de ces travaux, portant sur la pointe BNA et la pointe polymère nue, nous

permet d'imaginer et de proposer un système capable à la fois de posséder un bon taux de collection, un bon rendement quantique et une forte augmentation de la fluorescence, aussi bien en mode saturé que non saturé. Ce système, qui sera présenté dans le paragraphe suivant, est l'aboutissement de toutes ces recherches.

### 6.2.3 Antenne double résonance

La combinaison des différentes configurations performantes ainsi que la bonne connaissance du mécanisme de fonctionnement de la BNA nous permettent de proposer un nouveau système alliant à la fois une forte réduction du temps de vie de l'état excité d'un NE et un bon taux de collection accompagnés par une augmentation de la fluorescence aussi bien en mode saturé que non saturé.

#### Principes

Une récente étude sur l'origine et la nature de la résonance d'une BNA a été récemment effectuée à Besançon [9]. Cette étude décrit le comportement optique des BNAs réalisées sur substrat plan en mode de transmission. Il a été démontré à travers une étude modale que cette structure peut supporter plusieurs modes résonants à l'intérieur de son gap, lorsque l'épaisseur de la couche de métal augmente (figure 6.14). En effet, la BNA se comporte comme une cavité verticale ouverte ayant différents modes guidés. La fréquence du mode fondamental dépend de la géométrie de la section (nœud papillon). Ce mode a aussi une polarisation particulière qui fait que son excitation est seulement possible à l'aide d'une onde dont le champ électrique a une composante non nulle selon la direction des ailes métalliques de la BNA. Il présente donc un très bon recouvrement avec une onde plane polarisée selon cette direction. Le mode suivant admet une longueur d'onde trop petite et se trouve en dehors de l'intervalle spectral considéré. De plus, ses propriétés de polarisation font que son intégrale de recouvrement avec l'onde plane précédente est nulle. Lorsque la BNA est excitée par un faisceau ayant la bonne polarisation, le mode fondamental est

---

excité et une forte transmission est obtenue à la longueur d'onde de coupure de ce mode [161] dans le cas où l'épaisseur métallique est faible (inférieure à  $2\lambda_c$ ). La lumière est donc guidée à travers la couche métallique avec une vitesse de phase qui tend vers l'infini (indice effectif du mode guidé presque zéro) et une très faible vitesse de groupe correspondant à un fort ralentissement de la lumière, donc à une forte exaltation du champ EM. Dans le cas d'interférences à ondes multiples, ceci correspond à une condition de résonance de phase pour laquelle l'indice est nul. Il s'agit donc de l'harmonique zéro ( $FP_0$  sur la figure 6.14) qui n'existe pas pour un étalon Fabry-Perot conventionnel. Lorsque l'épaisseur augmente, d'autres harmoniques - similaires à ceux d'un Fabry-Perot - apparaissent. Ceci se traduit par l'apparition de pics supplémentaires dans le spectre de transmission à travers la BNA ( $FP_1$  à  $FP_4$  sur la figure 6.14). Pour tous ces pics, l'énergie électrique présente un fort confinement à l'intérieur de la BNA donc un facteur d'exaltation qui pourrait être exploité pour augmenter les taux d'émission des dipôles. La résonance de la BNA n'est donc pas directement liée à l'excitation d'un plasmon ; il s'agit du mode fondamental guidé qui est excité à sa coupure.

Notre idée consiste donc à concevoir la BNA de telle façon à ce que le premier pic de transmission ( $FP_0$ ) corresponde à la longueur d'onde d'émission de fluorescence ( $\lambda = 1550nm$ ) des NEs alors que le pic  $FP_1$  est à la longueur d'onde d'excitation ( $\lambda = 808nm$ ). De cette façon, l'exaltation du champ EM dans la BNA sera doublement utilisée. Il est à noter que cette optimisation doit être effectuée en présence de la pointe collectrice dont la présence modifie significativement les positions des pics de transmission de la BNA.

Le système global proposé est donc basé sur le concept de l'antenne Yagi-Uda précédemment décrite mais composé, cette fois-ci, d'un résonateur (basé sur la nano-ouverture à multi-résonance) en plus du réflecteur (basé sur l'étude du miroir avec la pointe polymère) et du directeur (basé sur la pointe polymère). ce système est présenté sur la figure 6.15. Le réflecteur est donc comme précédemment une couche de métal de 100 nm d'épaisseur (en aluminium ici), placé à 225 nm de la BNA. Cette valeur de la distance a été numériquement déterminée de telle façon à obtenir un maximum de collection dans

---

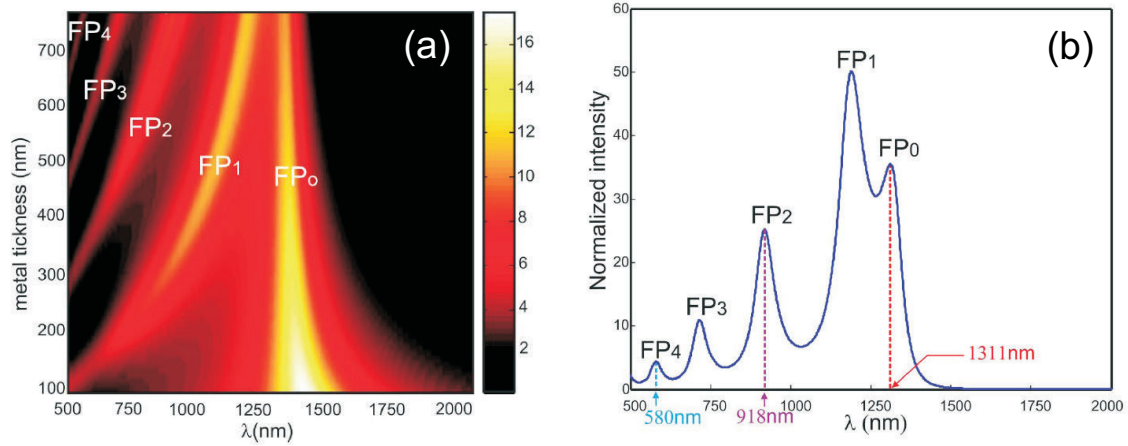


FIGURE 6.14 – (a) Spectre de transmission d’une BNA en fonction de l’épaisseur du métal, (b) intensité électrique normalisée en champ proche au centre du gap d’une BNA d’épaisseur 800 nm.

la pointe. Le résonateur, quant à lui, est une BNA ( $D=285$  nm et  $G=35$  nm) usinée dans une couche d’aluminium de 250 nm d’épaisseur. Cette épaisseur de métal garantit à la structure une double résonance à deux longueurs d’onde différentes, l’une à la longueur d’onde de 808 nm (longueur d’onde d’excitation du NE) et l’autre à celle de 1550 nm (longueur d’onde d’émission du NE) comme montré sur la figure 6.16. La longueur d’onde à 1550 nm correspondant au mode de coupure et celle à 808 nm au premier mode Fabry-Perot. La distribution de l’intensité électrique lumineuse est montrée sur la figure 6.17 pour les deux longueurs d’onde. Comme attendu, une répartition quasi uniforme, correspondant à une très faible valeur de l’indice du mode guidé, est obtenue pour  $FP_0$  tandis qu’un minimum (un nœud) d’énergie est localisé au milieu de la cavité (dans le sens de l’épaisseur métallique) pour  $FP_1$ . Le système est complété par la pointe polymère placée à 10 nm de la BNA permettant le couplage de l’énergie collectée au mode de fibre. Entre la pointe et la nano-ouverture est placé le NE (dipôle électrique orienté parallèlement aux ailes métalliques du papillon). L’excitation à  $\lambda = 808\text{nm}$  se fait via la pointe, de même que la collection. La pointe faisait 9  $\mu\text{m}$  de long, comme précédemment il est fait l’hypothèse que l’énergie sera totalement guidée sans perte jusqu’à la fibre optique.

Les simulations schématisées sur la figure 6.15 étaient effectuées avec un dipôle élec-

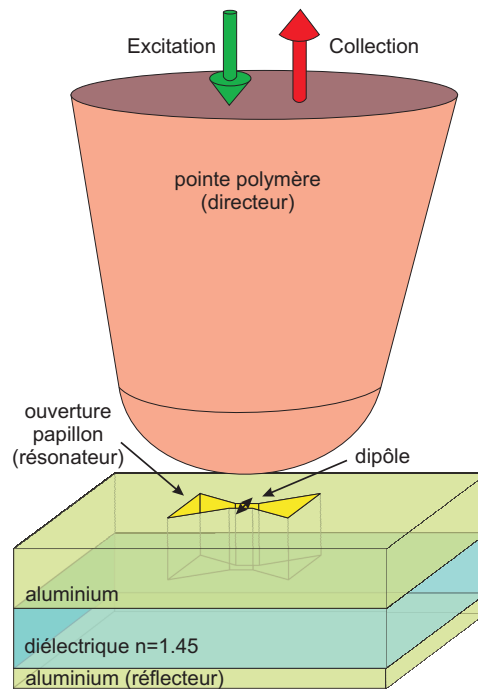


FIGURE 6.15 – Schéma du système réflecteur, résonateur et directeur.

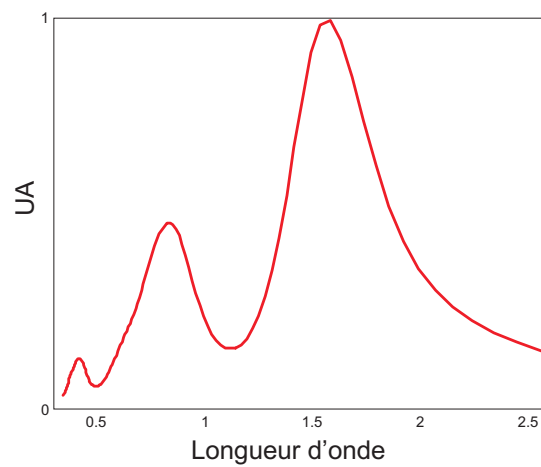


FIGURE 6.16 – Réponse spectrale de la BNA pour une épaisseur de métal de 250 nm, des dimensions extérieures de 280 nm et un gap de 30 nm.

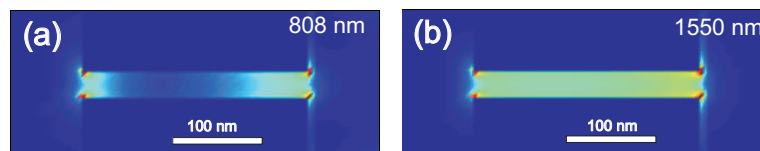


FIGURE 6.17 – Intensité électrique à l'intérieur du gap pour (a) la longueur d'onde de 808 nm et (b) la longueur d'onde de 1550 nm.



trique placé à 5 nm devant l'apex de la pointe et pour des rayons de courbure de la pointe variant de 500 nm à 1.5  $\mu\text{m}$ .

### Facteur de Purcell, rendements quantiques et couplage

L'augmentation de la puissance émise par le dipôle électrique ( $P_{tot}/P_0$ ) ainsi que l'augmentation du taux de décroissance total  $\Gamma_{tot}$  (équation (5.15)) et le rendement quantique dans tout l'espace  $q$  et dans la pointe  $q_{pointe}$  (équation (5.18)) sont représentés en fonction du rayon de courbure de la pointe dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	$P_{tot}/P_0$	$\Gamma_{tot}$	$q$	$q_{pointe}$
0.5 $\mu\text{m}$	913	365	0.467	0.28
0.75 $\mu\text{m}$	942	377	0.486	0.32
1 $\mu\text{m}$	954	382	0.495	0.35
1.25 $\mu\text{m}$	961	385	0.503	0.40
1.5 $\mu\text{m}$	971	389	0.506	0.40

Tout d'abord, comme dans le cas de la pointe BNA seule, nous observons que  $\Gamma_{tot}$  augmente avec le rayon de courbure de la pointe, c'est-à-dire que le temps de vie de l'état excité du NE diminue lorsque le rayon de courbure de la pointe augmente. Ce temps de vie décroît au maximum d'un facteur 389 (pour un rayon de 1.5  $\mu\text{m}$ ) par rapport au dipôle dans le vide. De plus, la puissance émise par le dipôle et collectée par la pointe ( $q_{pointe}$ ) augmente avec le rayon de courbure pour les mêmes raisons évoquées plus-haut. Le pourcentage de l'énergie émise par le dipôle et collectée par la pointe est inférieur au cas sans BNA (40 % dans le meilleur des cas contre 90 % sans BNA). Cela est dû à la forte absorption du métal constituant la BNA. En effet le rendement quantique de ce système est au mieux de 0.5, c'est-à-dire que 50 % de l'énergie émise par le dipôle sera directement absorbée par le métal (comme il est constaté dans les études précédentes).

Par contre, lorsque l'on se penche sur le pourcentage de la puissance rayonnée en champ lointain (sans celle absorbée), nous voyons que dans le meilleur des cas 80 % de cette énergie est couplée à la pointe, comme dans le cas avec le miroir. Nous avons donc

une relative bonne collection par la pointe de l'énergie émise par le dipôle et une très bonne collection par la pointe de l'énergie rayonnée en champ lointain par le dipôle.

En intégrant les résultats du couplage avec miroir, nous obtenons alors le pourcentage de couplage au mode de fibre de l'énergie émise par le dipôle ( $q_{mode\ de\ fibre}=q_{pointe} \times$  couplage au mode) donné dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	$q_{mode\ de\ fibre}$	% rayonné et couplé
0.5 $\mu\text{m}$	0.2	0.375
0.75 $\mu\text{m}$	0.175	0.34
1 $\mu\text{m}$	0.22	0.435
1.25 $\mu\text{m}$	0.2	0.4
1.5 $\mu\text{m}$	0.068	0.137

D'après ce tableau, nous constatons que les pointes ayant un rayon de courbure de 500 nm à 1.25  $\mu\text{m}$  couplent de manière similaire (environ 20%) l'énergie émise par un dipôle au mode de fibre optique monomode à 1.55  $\mu\text{m}$ . De plus, si nous nous intéressons au pourcentage de l'énergie rayonnée en champ lointain, couplée au mode fibre, nous obtenons environ 40 % de couplage pour ces 4 pointes. Par contre, la pointe de rayon de courbure de 1.5  $\mu\text{m}$  ne semble toujours pas adaptée pour un couplage efficace, avec seulement 6.8 % de l'énergie émise par le NE.

En conclusion de cette étude, on peut dire qu'on a conçu un système très performant pour coupler l'énergie rayonnée par un dipôle directement au mode d'une fibre optique malgré une absorption assez forte par le métal constituant la BNA. L'évaluation des performances globales de ce système passe obligatoirement par la détermination de l'augmentation du taux de fluorescence qui sera abordée dans le paragraphe suivant.

## Augmentation du taux de fluorescence

Lorsque l'on s'intéresse cette fois à l'augmentation du taux de fluorescence, il faut, comme auparavant, considérer le dipôle dans les deux cas de modes saturé et non saturé.

### Mode saturé

Comme nous le savons, l'augmentation du taux de fluorescence en mode saturé est définie par l'équation (5.16). Celle-ci peut être calculée en considérant tout ce qui est rayonné ( $\eta_F$ ), ce qui est rayonné et collecté par la pointe ( $\eta_F \text{ pointe}$ ) ou encore, ce qui est couplé au mode de fibre ( $\eta_F \text{ fibre}$ ). Ces résultats sont représentés sous forme graphique sur la figure 6.18 et données sous forme de tableau ci-dessous pour les cinq pointes étudiées précédemment (5 rayons de courbure différents).

Rayon de courbure	$\eta_F$	$\eta_F \text{ pointe}$	$\eta_F \text{ fibre}$
0.5 $\mu\text{m}$	426	255	184
0.75 $\mu\text{m}$	458	301	165
1 $\mu\text{m}$	472	334	209
1.25 $\mu\text{m}$	483	384	198
1.5 $\mu\text{m}$	491	388	66

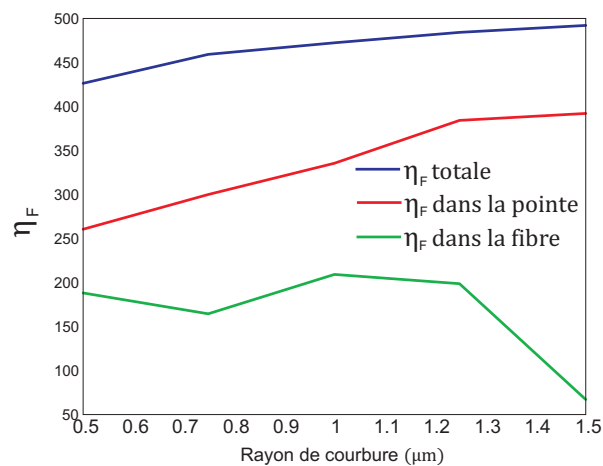


FIGURE 6.18 – augmentation du taux de fluorescence total, dans la pointe et dans la fibre pour le système en mode saturé.

Encore une fois, on constate que le taux de fluorescence augmente avec le rayon de courbure et qu'une exaltation du taux de fluorescence est obtenue aussi bien pour la partie rayonnée dans tout l'espace que pour celle collectée et guidée par la fibre. Le meilleur

comportement est obtenu pour un rayon de  $1\ \mu\text{m}$ . Nous avons donc pour cette configuration et en mode saturé une très bonne augmentation de ce taux de fluorescence, comme dans le cas de l'ouverture papillon en bout de pointe, mais cette fois avec un très bon couplage dans la pointe et dans la fibre optique. Reste à savoir si celui-ci s'améliore en mode non saturé.

### Mode non-saturé

Pour le mode non-saturé, l'augmentation est toujours définie par l'équation (5.17). Pour ce mode il nous a été donné la possibilité (par correspondance avec Geoffrey Burr du centre de recherche d'IBM) de simuler l'excitation par la pointe en considérant toute la pointe polymère de  $30\ \mu\text{m}$ . Depuis le début de cette étude le système considéré est le réflecteur, la nano-ouverture et la pointe, l'excitation via la fibre optique sera donc calculée avec tous ces éléments ( $I_e$ ) et en leur absence ( $I_0$ ) comme montré sur le schéma sur la figure 6.19. Cette excitation est effectué par un faisceau gaussien à la longueur d'onde de  $808\ \text{nm}$  ayant un waist de  $6\ \mu\text{m}$ . Ce faisceau est injecté dans la fibre monomode (pour la longueur d'onde  $\lambda = 1550\text{nm}$ ) à  $1.25\mu\text{m}$  de la jonction pointe-fibre. Un faisceau gaussien n'a sûrement pas le profil du mode guidé qui serait en sortie de fibre mais nous considérons que la pointe est assez longue pour que le mode guidé puisse s'installer après propagation sur quelques microns. Les résultats obtenus pour ce mode en fonction du rayon, sont montrés sur la figure 6.20 et dans le tableau ci-dessous.

Rayon de courbure	$\eta_F$	$\eta_{F\text{pointe}}$	$\eta_{F\text{fibre}}$
$0.5\ \mu\text{m}$	1205	735	529
$0.75\ \mu\text{m}$	7162	4675	2571
$1\ \mu\text{m}$	87	62	39
$1.25\ \mu\text{m}$	5717	4547	2346
$1.5\ \mu\text{m}$	2182	1737	293

Comme nous pouvons le voir, les valeurs de l'augmentation de la fluorescence en mode

---

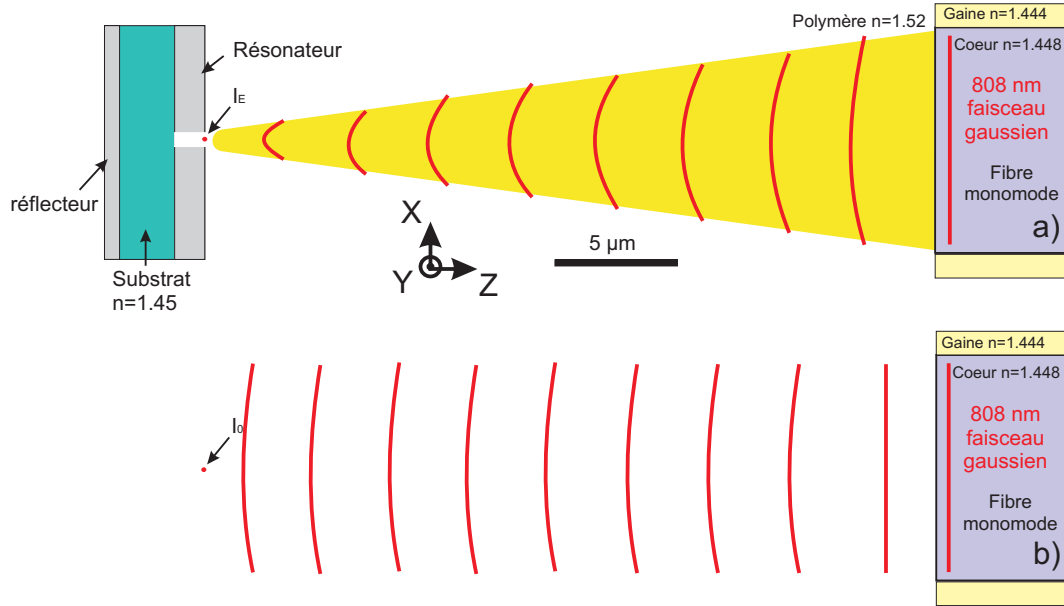


FIGURE 6.19 – Schéma du calcul de  $I_e$  et  $I_0$ , intervenant dans le calcul de l'augmentation de la fluorescence.

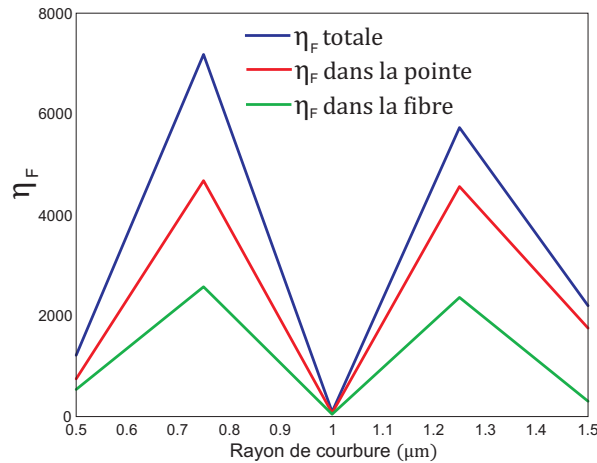


FIGURE 6.20 – augmentation du taux de fluorescence total, dans la pointe et dans la fibre pour le système en mode non-saturé.

non-saturé changent énormément en fonction du rayon de courbure de la pointe polymère considérée. Cette augmentation est par exemple très élevée pour un rayon de 750 nm ou 1250 nm et très petite pour le rayon de 1  $\mu\text{m}$ . Cela s'explique par le fait que la distribution du champ devant la pointe dépend énormément du rayon de courbure. Pour illustrer cela, nous présentons sur la figure 6.21 les distributions de l'intensité électrique dans un plan longitudinal passant par l'axe de symétrie des pointes dans le cas d'une excitation à 808 nm. En effet, nous pouvons constater que l'extrémité de la pointe se comporte,

d'une certaine manière, comme une microlentille qui va focaliser le faisceau guidé plus ou moins près du bout de la pointe. Ainsi, la position du point de focalisation ne dépend pas seulement de la taille de la micro-lentille mais aussi de la forme du faisceau l'éclairant. Nous avons l'impression que dans le cas où le rayon de courbure vaut  $1\mu m$ , le faisceau émergent est divergent et la focalisation se fait à l'intérieur de la pointe.

D'autre part, comme en mode non-saturé, l'augmentation de la fluorescence dépend très fortement de l'intensité lumineuse à l'endroit du NE. Ainsi, les pointes dont la focalisation se fait à cet endroit verront leurs  $\eta_F$  augmenter ce qui explique la grande différence entre les valeurs obtenues.

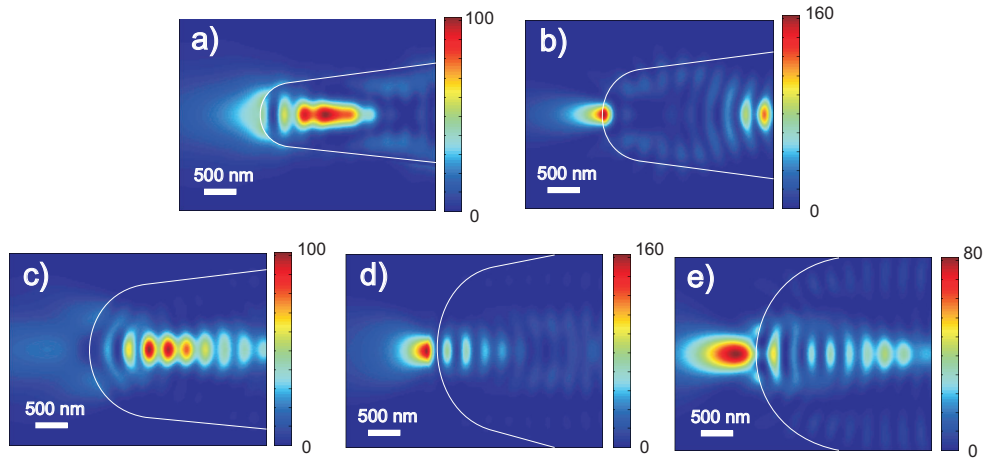


FIGURE 6.21 – Intensité électrique d'une coupe longitudinale de la pointe en fonction de son rayon de courbure à  $\lambda = 808$  nm, a) 500 nm, b) 750 nm, c) 1000 nm, d) 1250 nm, e) 1500 nm.

Il apparaît en conclusion que pour certaines pointes, ce système permet à la fois de réduire le temps de vie des états excités d'un NE, avoir un bon taux de collection de l'énergie émise par un NE, et exalter significativement le taux de fluorescence même après couplage au mode de fibre, aussi bien en mode saturé que non saturé. Ces pointes sont celles ayant des rayons de courbure de 750 nm et  $1.25\mu m$ . En revanche, les pointes de rayon de courbure de 1 et  $1.5\mu m$  seront à écarter du fait d'une mauvaise augmentation de la fluorescence en mode non saturé pour la première et d'un mauvais couplage pointe-fibre pour la deuxième. La pointe de rayon de courbure de 500 nm présente de

moyennes performances dans tous les cas. La configuration Yagi-Uda combinant la BNA avec le miroir et la pointe polymère nue serait très adapté dans des domaines tel que les télécommunications puisqu'il allie une forte cadence d'émission de photons que ce soit en mode saturé ou non saturé.

## Conclusion

En conclusion sur ce chapitre, une étude expérimentale portant sur la réduction du temps de vie de l'état excité d'une boîte quantique a été réalisée. Les résultats obtenus sont en bon accord avec ce qui est prédit théoriquement à travers des simulations numériques par FDTD. Ces résultats sont encourageants et nous donnent beaucoup d'espoirs pour la suite des expériences qu'il reste à mener et qui porte sur les configurations optimisées qui ont été proposées et étudiées numériquement. L'ensemble de ces travaux aussi bien théoriques qu'expérimentaux nous ont permis d'accroître significativement nos connaissances dans le domaine du comportement d'un NE en présence de nano-structure et de la façon à optimiser et donc tirer profit de ce couplage. Il n'est donc pas une conclusion de fin mais plutôt une introduction à de plus amples recherches dans ce domaine.

---





## Conclusion générale

Tout au long de ce manuscrit nous avons présenté des études aussi bien théoriques qu'expérimentales sur un nouveau type de sonde, la pointe à nano-ouverture papillon, dans le but d'apporter une solution efficace à la microscopie optique en champ proche. Ceci a nécessité l'acquisition de certaines compétences relatives au domaine de la nano-optique allant de la microscopie en champ proche jusqu'au comportement d'un NE au voisinage d'une nano-structure (ici la sonde). Les applications qui en découlent vont de la caractérisation vectorielle du champ proche électrique, au couplage efficace de l'information émise par un NE au mode de la fibre optique associée à la pointe.

Il a notamment été démontré expérimentalement que cette sonde ne détecte qu'une composante du champ électrique optique à la surface d'un échantillon diélectrique (réseau, cristal photonique). Comme il a été prouvé théoriquement, la composante collectée est celle parallèle aux ailes métalliques du papillon de l'antenne. En outre, il a été montré que la pointe BNA possédait de très bonnes propriétés de collection (150 fois supérieure à celle d'une pointe à nano-ouverture circulaire de 100 nm de diamètre) et une résolution de l'ordre de  $\lambda/50$ .

Au cours de ce travail, plusieurs difficultés sont apparues. Tout d'abord la fabrication de la nano-ouverture en bout de pointe demande une très grande finesse du FIB de manière à usiner le plus fidèlement possible la géométrie papillon de l'ouverture. Il faudra donc disposer d'un FIB avec la meilleure résolution possible (diamètre du faisceau  $<$  à la dimension du gap). De plus, pour détecter les deux composantes du champ électrique

---

champ proche, la solution qui consiste à tourner la pointe n'est pas viable puisque cela implique la rotation de toute la tête SNOM. Nous devons donc tourner l'échantillon autour de l'axe de la pointe afin de garder la même zone d'analyse. Cela reste très délicat et implique, dans tous les cas, de faire deux scans différents pour obtenir les deux composantes transverses du champ électrique. En outre, le taux de polarisation de notre sonde est satisfaisant mais non optimal, il est apparu qu'il dépendait également de l'indice optique de l'échantillon sous analyse.

Une solution envisageable pour résoudre ces problèmes dans le futur tout en gardant les objectifs fixés, serait d'utiliser une nano-antenne qui n'est plus sensible à la polarisation, mais qui garderait des propriétés de transmission et de résolution élevées. La polarisation du signal optique se ferait alors à posteriori de manière à collecter les deux composantes transverses du champ électrique avec seulement un scan de l'échantillon étudié [162]. Un tel système est déjà à l'étude dans notre laboratoire.

Nous avons démontré dans ce travail, théoriquement et expérimentalement, comment cette sonde affectait l'émission d'un nano-émetteur. En particulier, cette pointe diminue fortement le temps de vie d'un état excité d'un NE, tout en augmentant le taux de fluorescence de ce dernier. Les différentes configurations étudiées démontrent l'intérêt d'utiliser une BNA pour modifier l'émission de ces émetteurs. En revanche, chaque application utilisera une configuration différente de BNA. Par exemple, pour un usage en télécommunications nous nous orienterons plutôt sur un système d'antenne à double résonance, comme il a été présenté dans ce manuscrit. Alors que pour des applications en biologie, la pointe BNA serait plus appropriée.

Pour cela, il est possible d'optimiser la sonde pour de telles applications. Dans ce cas, le système à double résonance proposé doit donc être modifié en intégrant l'antenne sur la pointe tout en gardant ses propriétés (double résonance à la longueur d'onde d'excitation et à la longueur d'onde d'émission du NE). Ce type de pointe est envisageable et sera

---

développé dans le futur.

De manière générale, je pense vous avoir montré que cette pointe et cette nano-antenne peuvent se décliner de différentes façons en fonction de l'application visée. Par exemple, on peut augmenter la fluorescence d'un NE ou encore réduire le temps de vie de son état excité. De même, ces sondes pourraient être utilisées pour réaliser du piégeage optique ou encore de la nano-lithographie, etc. Une de ses variantes permet même d'augmenter et confiner significativement le champ magnétique proche [56]. Nous pensons donc qu'un tel système, via des améliorations ou des adaptations, aura une place importante dans le futur dans la nano-photonique et permettra de faire le lien avec le domaine de l'optique quantique. Il permet, en tout cas, d'ouvrir un champ de recherche entièrement nouveau qui doit être étudié plus en profondeur.

---



## Bibliographie

- [1] M. Suarez, T. Grosjean, D. Charraut, and D. Courjon, “Nanoring as a magnetic or electric field sensitive nano-antenna for near-field optics applications,” *Optics Communications*, vol. 270, no. 2, pp. 447 – 454, 2007.
  - [2] T. Grosjean, A. Fahys, M. Suarez, D. Charraut, R. Salut, and D. Courjon, “Annular nanoantenna on fibre micro-axicon,” *Journal of Microscopy*, vol. 229, no. 2, pp. 354–364, 2008.
  - [3] P. Muhlschlegel, H.-J. Eisler, O. J. F. Martin, B. Hecht, and D. W. Pohl, “Resonant Optical Antennas,” *Science*, vol. 308, no. 5728, pp. 1607–1609, 2005.
  - [4] T. H. Taminiau, R. J. Moerland, F. B. Segerink, L. Kuipers, and N. F. van Hulst, “ $\lambda/4$  resonance of an optical monopole antenna probed by single molecule fluorescence,” *Nano Letters*, vol. 7, no. 1, pp. 28–33, 2007. PMID : 17212435.
  - [5] A. G. Curto, G. Volpe, T. H. Taminiau, M. P. Kreuzer, R. Quidant, and N. F. van Hulst, “Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna,” *Science*, vol. 329, no. 5994, pp. 930–933, 2010.
  - [6] R. D. Grober, R. J. Schoelkopf, and D. E. Prober, “Optical antenna : Towards a unity efficiency near-field optical probe,” *Applied Physics Letters*, vol. 70, no. 11, pp. 1354–1356, 1997.
  - [7] D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, G. Kino, and W. E. Moerner, “Gap-dependent optical coupling of single "bowtie" nanoantennas resonant in the visible,” *Nano Letters*, vol. 4, no. 5, pp. 957–961, 2004.
  - [8] E. X. Jin and X. Xu, “Enhanced optical near field from a bowtie aperture,” *Applied Physics Letters*, vol. 88, no. 15, p. 153110, 2006.
  - [9] I. A. Ibrahim, M. Mivelle, T. Grosjean, J.-T. Allegre, G. W. Burr, and F. I. Baida, “Bowtie-shaped nanoaperture : a modal study,” *Opt. Lett.*, vol. 35, pp. 2448–2450, Jul 2010.
  - [10] H. Guo, T. P. Meyrath, T. Zentgraf, N. Liu, L. Fu, H. Schweizer, and H. Gies-sen, “Optical resonances of bowtie slot antennas and their geometry and material dependence,” *Opt. Express*, vol. 16, pp. 7756–7766, May 2008.
  - [11] P. Vo, Thanh, “Optical near-field characterization of slow-bloch mode based photonic crystal devices,” 2011.
-

- 
- [12] R. R. Chance, A. Prock, and R. Silbey, *Molecular Fluorescence and Energy Transfer Near Interfaces*, pp. 1–65. John Wiley & Sons, Inc., 1978.
- [13] D. Kleppner, “Inhibited spontaneous emission,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 47, pp. 233–236, Jul 1981.
- [14] P. Lohdahl, A. Driel van, I. Nikolaev, A. Irman, K. Overgaag, D. Vanmaekelbergh, and W. Vos, “Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals,” *nature*, vol. 430, p. 654, 2004.
- [15] J. Enderlein, “Theoretical study of single molecule fluorescence in a metallic nanocavity,” *Applied Physics Letters*, vol. 80, no. 2, pp. 315–317, 2002.
- [16] M. Kuttge, F. J. Garcia de Abajo, and A. Polman, “Ultrasmall mode volume plasmonic nanodisk resonators,” *Nano Letters*, vol. 10, no. 5, pp. 1537–1541, 2010.
- [17] R. Carminati, J.-J. Greffet, C. Henkel, and J. Vigoureux, “Radiative and non-radiative decay of a single molecule close to a metallic nanoparticle,” *Optics Communications*, vol. 261, no. 2, pp. 368 – 375, 2006.
- [18] P. Anger, P. Bharadwaj, and L. Novotny, “Enhancement and quenching of single-molecule fluorescence,” *Physical review letters*, vol. 96, no. 11, p. 113002, 2006.
- [19] A. Mohammadi, V. Sandoghdar, and M. Agio, “Gold nanorods and nanospheroids for enhancing spontaneous emission,” *New Journal of Physics*, vol. 10, p. 105015, 2008.
- [20] V. Giannini and J. A. Sánchez-Gil, “Excitation and emission enhancement of single molecule fluorescence through multiple surface-plasmon resonances on metal trimer nanoantennas,” *optics letters*, vol. 33, pp. 899–901, 2008.
- [21] J. N. Farahani, D. W. Pohl, H.-J. Eisler, and B. Hecht, “Single quantum dot coupled to a scanning optical antenna : A tunable superemitter,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, p. 017402, Jun 2005.
- [22] A. Muller, E. B. Flagg, M. Metcalfe, J. Lawall, and G. S. Solomon, “Coupling an epitaxial quantum dot to a fiber-based external-mirror microcavity,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 17, p. 173101, 2009.
- [23] M. Davanco, M. Rakher, W. Wegscheider, A. Badolato, and K. Srinivasan, “Efficient quantum dot single photon extraction into an optical fiber using a nanophotonic directional coupler,” *ArXiv e-prints*, Apr. 2011.
- [24] A. F. Koenderink, M. Kafesaki, C. M. Soukoulis, and V. Sandoghdar, “Spontaneous emission rates of dipoles in photonic crystal membranes,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 23, pp. 1196–1206, Jun 2006.
- [25] D. Courjon and C. Bainier, *Le champ proche optique : Théorie et applications*. Springer, 2001.
- [26] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of nano-optics*. Cambridge Univ Pr, 2006.
-

- 
- [27] S. Maier, *Plasmonics : fundamentals and applications*. Springer Verlag, 2007.
- [28] J. Joannopoulos, *Photonic crystals : molding the flow of light*. Princeton Univ Pr, 2008.
- [29] P. Bharadwaj, B. Deutsch, and L. Novotny, “Optical antennas,” *Advances in Optics and Photonics*, vol. 1, no. 3, pp. 438–483, 2009.
- [30] M. Burrelli, R. J. P. Engelen, A. Opheij, D. van Oosten, D. Mori, T. Baba, and L. Kuipers, “Observation of polarization singularities at the nanoscale,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, p. 033902, Jan 2009.
- [31] E. Descrovi, L. Vaccaro, W. Nakagawa, L. Aeschimann, U. Staufer, and H. P. Herzig, “Collection of transverse and longitudinal fields by means of apertureless nanoprobe with different metal coating characteristics,” *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 22, pp. 5340–5342, 2004.
- [32] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J.-C. Weeber, Y. Lacroute, J.-P. Goudonnet, and C. Girard, “Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples,” *Phys. Rev. B*, vol. 62, pp. 10504–10514, Oct 2000.
- [33] H. Kihm, S. Koo, Q. Kim, K. Bao, J. Kihm, W. Bak, S. Eah, C. Lienau, H. Kim, P. Nordlander, *et al.*, “Bethe-hole polarization analyser for the magnetic vector of light,” *Nature Communications*, vol. 2, p. 451, 2011.
- [34] A. Mohammadi, V. Sandoghdar, and M. Agio, “Gold, copper, silver and aluminum nanoantennas to enhance spontaneous emission,” *Journal of Computational and Theoretical Nanoscience*, vol. 6, pp. 2024–2030, July 2008.
- [35] D. Chang, A. Sørensen, P. Hemmer, and M. Lukin, “Quantum optics with surface plasmons,” *Physical review letters*, vol. 97, no. 5, p. 53002, 2006.
- [36] M. I. Davanco and K. Srinivasan, “Efficient spectroscopy of single embedded emitters using optical fiber taper waveguides,” *Opt. Express*, vol. 17, pp. 10542–10563, Jun 2009.
- [37] E. Betzig, J. Trautman, J. Weiner, T. Harris, and R. Wolfe, “Polarization contrast in near-field scanning optical microscopy,” *Applied optics*, vol. 31, no. 22, pp. 4563–4568, 1992.
- [38] H. Rudolf *Annalen der Physik und Chemie*, vol. 36, 1889.
- [39] G. Stutzman, W. Thiele, *Antenna Theory and Design*. 1997.
- [40] C. A. Balanis, *Antenna Theory : Analysis and Design*. Wiley-Interscience, 3 ed., Apr. 2005.
- [41] J. V. Rudd, J. L. Johnson, and D. M. Mittleman, “Quadrupole radiation from terahertz dipole antennas,” *Opt. Lett.*, vol. 25, pp. 1556–1558, Oct 2000.
- [42] J. V. Rudd, J. L. Johnson, and D. M. Mittleman, “Cross-polarized angular emission patterns from lens-coupled terahertz antennas,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 18, pp. 1524–1533, Oct 2001.
-

- 
- [43] H. C. Kim and X. Cheng, "Infrared dipole antenna enhanced by surface phonon polaritons," *Opt. Lett.*, vol. 35, pp. 3748–3750, Nov 2010.
  - [44] I. Codreanu and G. D. Boreman, "Influence of dielectric substrate on the responsivity of microstrip dipole-antenna-coupled infrared microbolometers," *Appl. Opt.*, vol. 41, pp. 1835–1840, Apr 2002.
  - [45] W. Shi, J. Xu, and X.-C. Zhang, "Terahertz generation from  $\text{Si}_3\text{N}_4$  covered photoconductive dipole antenna," *Chin. Opt. Lett.*, vol. 1, pp. 308–310, May 2003.
  - [46] H. Xue, W. Shi, and X. Ma, "Time-domain characteristics of terahertz radiation for dipole antenna of nonlinear photoconductive switches," in *Conference on Lasers and Electro Optics Pacific Rim 2009*, p. 711, Optical Society of America, 2009.
  - [47]
  - [48] H. Yagi, "Beam transmission of ultra shortwaves.," *Proc. IRE*, vol. 16, pp. 715–741, 1928.
  - [49] L. Page, "The magnetic antenna," *Phys. Rev.*, vol. 69, pp. 645–648, Jun 1946.
  - [50] V. K. O. De Loubens, G. Naletov, *Injection de spin dans une gmr*. 2005.
  - [51] J. Melngailis, "Focused ion beam technology and applications," *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, vol. 5, no. 2, pp. 469–495, 1987.
  - [52] V. Agrawal, P. Neuzil, and D. W. van der Weide, "A microfabricated tip for simultaneous acquisition of sample topography and high-frequency magnetic field," *Applied Physics Letters*, vol. 71, no. 16, pp. 2343–2345, 1997.
  - [53] J. Jackson, "Electrodynamics," *The Optics Encyclopedia*, 1975.
  - [54] P. Schuck, D. Fromm, A. Sundaramurthy, G. Kino, and W. Moerner, "Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas," *Physical review letters*, vol. 94, no. 1, p. 17402, 2005.
  - [55] L. Wang, S. Uppuluri, E. Jin, and X. Xu, "Nanolithography using high transmission nanoscale bowtie apertures," *Nano Letters*, vol. 6, no. 3, pp. 361–364, 2006.
  - [56] T. Grosjean, M. Mivelle, F. Baida, G. Burr, and U. Fischer, "Diabolo nanoantenna for enhancing and confining the magnetic optical field," *Nano letters*, 2011.
  - [57] H. Gao, K. Li, F. M. Kong, H. Xie, and J. Zhao, "Enhanced spontaneous emission of electric dipole by nano-optical antenna," in *Asia Communications and Photonics Conference and Exhibition*, p. ThBB3, Optical Society of America, 2009.
  - [58] L. Tang, E. Kocabas, S. Latif, A. K. Okyay, D. Ly-Gagnon, K. C. Saraswat, and D. A. Miller, "Near-infrared photodetector enhanced by an open-sleeve dipole antenna," in *Integrated Photonics and Nanophotonics Research and Applications*, p. ITuD3, Optical Society of America, 2007.
-



- 
- [59] V. S. Jagtap and C. Minot, "Study of radiation coupling to cavity modes using dipole feeds and patch antenna," in *Frontiers in Optics*, p. FThAA8, Optical Society of America, 2010.
- [60] M. Righini, P. Ghenuche, S. Cherukulappurath, V. Myroshnychenko, F. Garcia de Abajo, and R. Quidant, "Nano-optical trapping of rayleigh particles and escherichia coli bacteria with resonant optical antennas," *Nano letters*, vol. 9, no. 10, pp. 3387–3391, 2009.
- [61] P. Ghenuche, S. Cherukulappurath, T. H. Taminiau, N. F. van Hulst, and R. Quidant, "Spectroscopic mode mapping of resonant plasmon nanoantennas," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 101, p. 116805, Sep 2008.
- [62] J. Li, L. Thylén, and R. S. Williams, "Plasmonic monopole antenna at optical frequency range," in *Frontiers in Optics*, p. FThR2, Optical Society of America, 2010.
- [63] R. J. Moerland, T. H. Taminiau, L. Novotny, N. F. van Hulst, and L. Kuipers, "Reversible polarization control of single photon emission," *Nano Letters*, vol. 8, no. 2, pp. 606–610, 2008. PMID : 18193913.
- [64] T. Taminiau, F. Stefani, and N. van Hulst, "Enhanced directional excitation and emission of single emitters by a nano-optical yagi-uda antenna," *Opt. Express*, vol. 16, no. 14, pp. 10858–6, 2008.
- [65] J. Li, A. Salandrino, and N. Engheta, "Optical yagi-uda and reflector nanoantennas and their potential applications as nano-scale spectrum analyzers in molecular spectroscopy," in *Frontiers in Optics*, p. FWC4, Optical Society of America, 2006.
- [66] D. Dregely, R. Taubert, and H. Giessen, "3-d optical yagi-uda nanoantenna array," in *Quantum Electronics and Laser Science Conference*, p. QMH5, Optical Society of America, 2010.
- [67] K. D. Ko, A. Kumar, K. H. Fung, R. Ambekar, G. L. Liu, N. X. Fang, and K. C. Toussaint, "Nonlinear optical response from arrays of au bowtie nanoantennas," *Nano Letters*, vol. 11, no. 1, pp. 61–65, 2011.
- [68] A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, N. R. Conley, D. P. Fromm, G. S. Kino, and W. E. Moerner, "Toward nanometer-scale optical photolithography :â€utilizing the near-field of bowtie optical nanoantennas," *Nano Letters*, vol. 6, no. 3, pp. 355–360, 2006. PMID : 16522022.
- [69] Z. Zhang, A. Weber-Bargioni, S. W. Wu, S. Dhuey, S. Cabrini, and P. J. Schuck, "Manipulating nanoscale light fields with the asymmetric bowtie nano-colorsorter," *Nano Letters*, vol. 9, no. 12, pp. 4505–4509, 2009. PMID : 19899744.
- [70] N. A. Hatab, C.-H. Hsueh, A. L. Gaddis, S. T. Retterer, J.-H. Li, G. Eres, Z. Zhang, and B. Gu, "Free-standing optical gold bowtie nanoantenna with variable gap size for enhanced raman spectroscopy," *Nano Letters*, vol. 10, no. 12, pp. 4952–4955, 2010.
-

- 
- [71] H. Fischer and O. J. F. Martin, "Engineering the optical response of plasmonic nanoantennas," *Opt. Express*, vol. 16, pp. 9144–9154, Jun 2008.
- [72] D. Fromm, A. Sundaramurthy, A. Kinkhabwala, P. Schuck, G. Kino, and W. Moerner, "Exploring the chemical enhancement for surface-enhanced raman scattering with au bowtie nanoantennas," *The Journal of chemical physics*, vol. 124, p. 061101, 2006.
- [73] M. Schnell, A. Garcia-Etxarri, J. Alkorta, J. Aizpurua, and R. Hillenbrand, "Phase-resolved mapping of the near-field vector and polarization state in nanoscale antenna gaps," *Nano Letters*, vol. 10, no. 9, pp. 3524–3528, 2010.
- [74] R. Guo, E. C. Kinzel, Y. Li, S. M. Uppuluri, A. Raman, and X. Xu, "Three-dimensional mapping of optical near field of a nanoscale bowtie antenna," *Opt. Express*, vol. 18, pp. 4961–4971, Mar 2010.
- [75] E. C. Kinzel and X. Xu, "High efficiency excitation of plasmonic waveguides with vertically integrated resonant bowtie apertures," *Opt. Express*, vol. 17, pp. 8036–8045, May 2009.
- [76] E. C. Kinzel and X. Xu, "Extraordinary infrared transmission through a periodic bowtie aperture array," *Opt. Lett.*, vol. 35, pp. 992–994, Apr 2010.
- [77] Z. Rao, J. A. Matteo, L. Hesselink, and J. S. Harris, "A high-intensity bowtie nano-aperture vertical-cavity surface-emitting laser for near-field optics," in *Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, Optical Society of America, 2007.
- [78] N. Murphy-DuBay, L. Wang, E. C. Kinzel, S. M. V. Uppuluri, and X. Xu, "Nanopatterning using nsom probes integrated with high transmission nanoscale bowtie aperture," *Opt. Express*, vol. 16, pp. 2584–2589, Feb 2008.
- [79] E. Jin and X. Xu, "Focussed ion beam machined cantilever aperture probes for near-field optical imaging," *Journal of microscopy*, vol. 229, no. 3, pp. 503–511, 2008.
- [80] K. Yee, "Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equation in isotropic media," *IEEE Trans. Ant. Prop.*, vol. 14, pp. 302–7, May 1966.
- [81] A. Taflov and S. Hagness, *Computational Electrodynamics : The Finite-Difference Time-Domain Method, Third Edition*. 2005.
- [82] B. Abderrahmane, "Extension de la modélisation par fdtd en nano-optique," 2010.
- [83] J. A. Roden and S. D. Gedney, "Convolutional pml (cpml) : An efficient fdtd implementation of the cfs-pml for arbitrary media," *Microwave and Optical Technology Letters*, vol. 27, pp. 334–339, 2000.
- [84] R. Bachelot, C. Ecoffet, D. Deloëil, P. Royer, and D.-J. Lougnot, "Integration of micrometer-sized polymer elements at the end of optical fibers by free-radical photopolymerization," *Appl. Opt.*, vol. 40, pp. 5860–5871, Nov 2001.
-

- 
- [85] A. Ibrahim, Idriss, "Nano-antennes optique pour l'inspection des structures photoniques," 2010.
- [86] E. Synge, "Xxxviii. a suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region," *Philosophical Magazine Series 7*, vol. 6, no. 35, pp. 356–362, 1928.
- [87] G. A. Massey, "Microscopy and pattern generation with scanned evanescent waves," *Appl. Opt.*, vol. 23, pp. 658–660, Mar 1984.
- [88] D. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, "Optical stethoscopy : image recording with resolution  $\lambda/20$ ," *Applied Physics Letters*, vol. 44, no. 7, pp. 651–653, 1984.
- [89] D. Courjon, K. Sarayeddine, and M. Spajer, "Scanning tunneling optical microscopy," *Optics Communications*, vol. 71, no. 1-2, pp. 23 – 28, 1989.
- [90] R. Reddick, R. Warmack, and T. Ferrell, "New form of scanning optical microscopy," *Physical Review B*, vol. 39, no. 1, p. 767, 1989.
- [91] G. Binnig and H. Rohrer, "Scanning tunneling microscopy," *Surface Science*, vol. 126, no. 1-3, pp. 236–244, 1983.
- [92] A. Lahrech, R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. Boccara, "Infrared-reflection-mode near-field microscopy using an apertureless probe with a resolution of  $\lambda/600$ ," *Optics letters*, vol. 21, no. 17, pp. 1315–1317, 1996.
- [93] A. Lewis, M. Isaacson, R. Betzig, and A. Harootunian, "Near field scanning optical microscopy," Apr. 17 1990. US Patent 4,917,462.
- [94] T.-P. Vo, A. Rahmani, A. Belarouci, C. Seassal, D. Nedeljkovic, and S. Callard, "Near-field and far-field analysis of an azimuthally polarized slow bloch mode microlaser," *Opt. Express*, vol. 18, pp. 26879–26886, Dec 2010.
- [95] L. Novotny, M. Beversluis, K. Youngworth, and T. Brown, "Longitudinal field modes probed by single molecules," *Physical Review Letters*, vol. 86, no. 23, pp. 5251–5254, 2001.
- [96] T. Grosjean and D. Courjon, "Polarization filtering induced by imaging systems : Effect on image structure," *Physical Review E*, vol. 67, no. 4, p. 046611, 2003.
- [97] I. Marki, M. Salt, and H. Herzig, "Tuning the resonance of a photonic crystal microcavity with an afm probe," *Optics Express*, vol. 14, no. 7, pp. 2969–2978, 2006.
- [98] K. Okamoto, M. Lončar, T. Yoshie, A. Scherer, Y. Qiu, and P. Gogna, "Near-field scanning optical microscopy of photonic crystal nanocavities," *Applied physics letters*, vol. 82, p. 1676, 2003.
- [99] P. Kramper, M. Kafesaki, C. Soukoulis, A. Birner, F. Müller, U. Gösele, R. Wehrspohn, J. Mlynek, and V. Sandoghdar, "Near-field visualization of light confinement in a photonic crystal microresonator," *Optics letters*, vol. 29, no. 2, pp. 174–176, 2004.
-

- 
- [100] G. L. Gac, A. Rahmani, C. Seassal, E. Picard, E. Hadji, and S. Callard, "Tuning of an active photonic crystal cavity by an hybrid silica/silicon near-field probe," *Opt. Express*, vol. 17, pp. 21672–21679, Nov 2009.
- [101] N. Louvion, D. Gerard, J. Mouette, F. De Fornel, C. Seassal, X. Letartre, A. Rahmani, and S. Callard, "Local observation and spectroscopy of optical modes in an active photonic-crystal microcavity," *Physical review letters*, vol. 94, no. 11, p. 113907, 2005.
- [102] S. Vignolini, F. Intonti, F. Riboli, D. Wiersma, L. Balet, L. Li, M. Francardi, A. Gerardino, A. Fiore, and M. Gurioli, "Polarization-sensitive near-field investigation of photonic crystal microcavities," *Applied Physics Letters*, vol. 94, p. 163102, 2009.
- [103] A. Faraon, D. Englund, D. Bulla, B. Luther-Davies, B. Eggleton, N. Stoltz, P. Petroff, and J. Vučković, "Local tuning of photonic crystal cavities using chalcogenide glasses," *Applied Physics Letters*, vol. 92, p. 043123, 2008.
- [104] A. Koenderink, M. Kafesaki, B. Buchler, and V. Sandoghdar, "Controlling the resonance of a photonic crystal microcavity by a near-field probe," *Physical review letters*, vol. 95, no. 15, p. 153904, 2005.
- [105] A. Koenderink, R. Wuest, B. Buchler, S. Richter, P. Strasser, M. Kafesaki, A. Rogach, R. Wehrspohn, C. Soukoulis, D. Erni, *et al.*, "Near-field optics and control of photonic crystals," *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications*, vol. 3, no. 2-3, pp. 63–74, 2005.
- [106] S. Buil, J. Aubineau, J. Laverdant, and X. Quelin, "Local field intensity enhancements on gold semicontinuous films investigated with an aperture nearfield optical microscope in collection mode," *Journal of Applied Physics*, vol. 100, no. 6, p. 063530, 2006.
- [107] R. Bachelot, P. Gleyzes, and A. Boccara, "Near-field optical microscope based on local perturbation of a diffraction spot," *Optics letters*, vol. 20, no. 18, pp. 1924–1926, 1995.
- [108] B. H. L. Novotny, *Principles of nano-optics*. 2006.
- [109] G. Colas des Francs, C. Girard, J. Weeber, C. Chicane, T. David, A. Dereux, and D. Peyrade, "Optical analogy to electronic quantum corrals," *Physical review letters*, vol. 86, no. 21, pp. 4950–4953, 2001.
- [110] C. Chicanne, T. David, R. Quidant, J. Weeber, Y. Lacroute, E. Bourillot, A. Dereux, G. Colas des Francs, and C. Girard, "Chicanne et al. reply," *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 6, p. 69702, 2004.
- [111] E. M. Purcell, "Spontaneous emission probabilities at radio frequencies," *Phys. Rev.*, vol. 69, p. 681, Jan 1946.
- [112] J. R. Lakowicz, "Radiative decay engineering : Biophysical and biomedical applications," *Analytical Biochemistry*, vol. 298, no. 1, pp. 1 – 24, 2001.
-

- 
- [113] E. H. Hellen and D. Axelrod, "Fluorescence emission at dielectric and metal-film interfaces," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, pp. 337–350, Mar 1987.
- [114] M. Moskovits, "Surface-enhanced spectroscopy," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 57, pp. 783–826, Jul 1985.
- [115] C. Girard, O. Martin, and A. Dereux, "Molecular lifetime changes induced by nanometer scale optical fields," *Physical review letters*, vol. 75, no. 17, pp. 3098–3101, 1995.
- [116] M. Steiner, F. Schleifenbaum, C. Stupperich, A. Virgilio Failla, A. Hartschuh, and A. J. Meixner, "Microcavity-controlled single-molecule fluorescence," *ChemPhysChem*, vol. 6, no. 10, pp. 2190–2196, 2005.
- [117] J. Foresi, P. Villeneuve, J. Ferrera, E. Thoen, G. Steinmeyer, S. Fan, J. Joannopoulos, L. Kimerling, H. Smith, and E. Ippen, "Photonic-bandgap microcavities in optical waveguides," *nature*, vol. 390, pp. 143–145, Nov. 1997.
- [118] J.-K. Hwang, H.-Y. Ryu, and Y.-H. Lee, "Spontaneous emission rate of an electric dipole in a general microcavity," *Phys. Rev. B*, vol. 60, pp. 4688–4695, Aug 1999.
- [119] N. V. Hieu and N. B. Ha, "Time-resolved luminescence of the coupled quantum dot–microcavity system : general theory," *Advances in Natural Sciences : Nanoscience and Nanotechnology*, vol. 1, no. 4, p. 045001, 2010.
- [120] M. Trupke, J. Goldwin, B. Darquié, G. Dutier, S. Eriksson, J. Ashmore, and E. A. Hinds, "Atom detection and photon production in a scalable, open, optical microcavity," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 063601, Aug 2007.
- [121] Y. Xu, R. K. Lee, and A. Yariv, "Quantum analysis and the classical analysis of spontaneous emission in a microcavity," *Phys. Rev. A*, vol. 61, p. 033807, Feb 2000.
- [122] J. Claudon, J. Bleuse, N. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, and J.-M. Gerard, "A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire," *Nature Photonics*, vol. 4, pp. 174–177, Mar. 2010.
- [123] I. Friedler, C. Sauvan, J. P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, and J. M. Gérard, "Solid-state single photon sources : the nanowire antenna," *Opt. Express*, vol. 17, pp. 2095–2110, Feb 2009.
- [124] J. M. Gerard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg, "Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 81, pp. 1110–1113, Aug 1998.
- [125] M. Pelton, J. Vuckovic, G. S. Solomon, A. Scherer, Y. Yamamoto, and S. Member, "Three-dimensionally confined modes in micropost microcavities : quality factors and purcell factors," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 38, pp. 170–177, 2002.
-

- 
- [126] C. Hermann and O. Hess, "Modified spontaneous-emission rate in an inverted-opal structure with complete photonic bandgap," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, pp. 3013–3018, Dec 2002.
- [127] R. K. Lee, Y. Xu, and A. Yariv, "Modified spontaneous emission from a two-dimensional photonic bandgap crystal slab," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 17, pp. 1438–1442, Aug 2000.
- [128] Y. Li and R. Almeida, "Simultaneous broadening and enhancement of the 1.5  $\mu\text{m}$  photoluminescence peak of  $\text{Er}^{3+}$  ions embedded in a 1-d photonic crystal microcavity," *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 98, pp. 809–814, 2010. 10.1007/s00340-009-3885-1.
- [129] H. Altug, D. Englund, and J. Vuckovic, "Ultrafast photonic crystal nanocavity laser," *Nature Physics*, vol. 2, no. 7, pp. 484–488, 2006.
- [130] M. Kuttge, E. J. R. Vesseur, and A. Polman, "Fabry-pérot resonators for surface plasmon polaritons probed by cathodoluminescence," *Applied Physics Letters*, vol. 94, no. 18, p. 183104, 2009.
- [131] N. A. Issa and R. Guckenberger, "Fluorescence near metal tips : The roles of energy transfer and surface plasmon polaritons," *Opt. Express*, vol. 15, pp. 12131–12144, 2007.
- [132] E. Vesseur, F. de Abajo, and A. Polman, "Broadband purcell enhancement in plasmonic ring cavities," *Physical Review B*, vol. 82, no. 16, p. 165419, 2010.
- [133] Y. Song, J. Wang, M. Yan, and M. Qiu, "Subwavelength hybrid plasmonic nanodisk with high  $q$  factor and purcell factor," *Journal of Optics*, vol. 13, no. 7, p. 075001, 2011.
- [134] X. Zhu, J. Zhang, J. Xu, and D. Yu, "Vertical plasmonic resonant nanocavities," *Nano Letters*, vol. 11, no. 3, pp. 1117–1121, 2011.
- [135] I. Mallek-Zouari, S. Buil, X. Quelin, B. Mahler, B. Dubertret, and J.-P. Hermier, "Plasmon assisted single photon emission of  $\text{CdSe/CdS}$  nanocrystals deposited on random gold film," *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 5, p. 053109, 2010.
- [136] H. T. Miyazaki and Y. Kurokawa, "Squeezing visible light waves into a 3-nm-thick and 55-nm-long plasmon cavity," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, p. 097401, Mar 2006.
- [137] Y. C. Jun, R. D. Kekatpure, J. S. White, and M. L. Brongersma, "Nonresonant enhancement of spontaneous emission in metal-dielectric-metal plasmon waveguide structures," *Phys. Rev. B*, vol. 78, p. 153111, Oct 2008.
- [138] G. Colas Des Francs, A. Bouhelier, E. Finot, J. Weeber, A. Dereux, C. Girard, E. Dujardin, *et al.*, "Fluorescence relaxation in the near-field of a mesoscopic metallic particle : distance dependence and role of plasmon modes," *Optics express*, vol. 16, p. 17654, 2008.
-

- 
- [139] H. Aouani, O. Mahboub, N. Bonod, E. Devaux, E. Popov, H. Rigneault, T. W. Ebbesen, and J. Wenger, "Bright unidirectional fluorescence emission of molecules in a nanoaperture with plasmonic corrugations," *Nano Letters*, vol. 11, no. 2, pp. 637–644, 2011.
- [140] A. Cuche, O. Mollet, A. Drezet, and S. Huant, "'deterministic" quantum plasmonics," *Nano Letters*, vol. 10, no. 11, pp. 4566–4570, 2010.
- [141] A. Devilez, B. Stout, and N. Bonod, "Compact metallo-dielectric optical antenna for ultra directional and enhanced radiative emission," *ACS Nano*, vol. 4, no. 6, pp. 3390–3396, 2010.
- [142] R. Esteban, T. V. Teperik, and J. J. Greffet, "Optical patch antennas for single photon emission using surface plasmon resonances," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, p. 026802, Jan 2010.
- [143] J. Farahani, H. Eisler, D. Pohl, M. Pavius, P. Flückiger, P. Gasser, and B. Hecht, "Bow-tie optical antenna probes for single-emitter scanning near-field optical microscopy," *Nanotechnology*, vol. 18, p. 125506, 2007.
- [144] A. Kinkhabwala, Z. Yu, S. Fan, Y. Avlasevich, K. Müllen, and W. Moerner, "Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna," *Nature Photonics*, vol. 3, pp. 654–657, Nov. 2009.
- [145] A. F. Koenderink, "On the use of purcell factors for plasmon antennas," *Opt. Lett.*, vol. 35, pp. 4208–4210, Dec 2010.
- [146] L. R. S. Kuhn, Ulf Håkanson and V. Sandoghdar, "Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna," *physical review letters*, vol. 97, p. 017402, 2006.
- [147] M. A. Lavinia Rogobete, Franziska Kaminski and V. Sandoghdar, "Design of plasmonic nanoantennae for enhancing spontaneous emission," *optics letters*, vol. 32, pp. 1623–1625, 2007.
- [148] T. H. Taminiau, F. D. Stefani, and N. F. van Hulst, "Optical nanorod antennas modeled as cavities for dipolar emitters : Evolution of sub- and super-radiant modes," *Nano Letters*, vol. 0, no. 0, 2011.
- [149] J. Wenger, D. Gérard, J. Dintinger, O. Mahboub, N. Bonod, E. Popov, T. W. Ebbesen, and H. Rigneault, "Emission and excitation contributions to enhanced single molecule fluorescence by gold nanometric apertures," *Opt. Express*, vol. 16, pp. 3008–3020, Mar 2008.
- [150] T. Miyazawa, K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama, M. Takatsu, and Y. Arakawa, "Single-photon generation in the 1.55-um optical-fiber band from an inas/inp quantum dot," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 44, no. 20, pp. L620–L622, 2005.
-

- 
- [151] T. Miyazawa, J. Tatebayashi, S. Hirose, T. Nakaoka, S. Ishida, S. Iwamoto, K. Take-moto, T. Usuki, N. Yokoyama, M. Takatsu, and Y. Arakawa, "Development of elec-trically driven single-quantum-dot device at optical fiber bands," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 45, no. 4B, pp. 3621–3624, 2006.
- [152] C. Soller, O. Cohen, B. J. Smith, I. A. Walmsley, and C. Silberhorn, "High-performance single-photon generation with commercial-grade optical fiber," *Phys. Rev. A*, vol. 83, p. 031806, Mar 2011.
- [153] C. Girard, O. Martin, G. Leveque, G. Des Francs, and A. Dereux, "Generalized bloch equations for optical interactions in confined geometries," *Chemical physics letters*, vol. 404, no. 1-3, pp. 44–48, 2005.
- [154] M. Born, F. Sauter, and J. Dougall, *Atomic Physics*. GE Stechert & co., 1936.
- [155] R. Carminati, "Chaire d'innovation technologique liliane bettencourt, séminaire du 16 mars 2009 : Imagerie en champ proche optique.," 2008.
- [156] V. S. F. Kaminski, "Finite-difference time-domain modeling of decay rate in the field of metal nanostructures," *Journal of Computational and Theoretical nanoscience*, vol. 4, pp. 635–643, 2007.
- [157] J. Wenger, B. Cluzel, J. Dintinger, N. Bonod, A. Fehrembach, E. Popov, P. Lenne, T. Ebbesen, and H. Rigneault, "Radiative and nonradiative photokinetics alteration inside a single metallic nanometric aperture," *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 111, no. 30, pp. 11469–11474, 2007.
- [158] K. Shimizu, R. Neuhauser, C. Leatherdale, S. Empedocles, W. Woo, and M. Ba-wendi, "Blinking statistics in single semiconductor nanocrystal quantum dots," *Physical Review B*, vol. 63, no. 20, p. 205316, 2001.
- [159] T. Grosjean, A. Sabac, and D. Courjon, "A versatile and stable device allowing the efficient generation of beams with radial, azimuthal or hybrid polarizations," *Optics communications*, vol. 252, no. 1-3, pp. 12–21, 2005.
- [160] C. Chen and D. Cheng, "Optimum element lengths for yagi-uda arrays," *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, vol. 23, no. 1, pp. 8–15, 1975.
- [161] F. Baida, D. Van Labeke, G. Granet, A. Moreau, and A. Belkhir, "Origin of the super-enhanced light transmission through a 2-d metallic annular aperture array : a study of photonic bands," *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 79, no. 1, pp. 1–8, 2004.
- [162] T. Grosjean, I. Ibrahim, M. Suarez, G. Burr, M. Mivelle, and D. Charraut, "Full vectorial imaging of electromagnetic light at subwavelength scale," *Optics Express*, vol. 18, no. 6, pp. 5809–5824, 2010.
-



Dans la première partie de cette thèse, nous tirons parti du concept de nano-antenne optique afin d'apporter une solution innovante au problème d'interprétation de la microscopie champ proche optique (SNOM). En effet, il est connu que certaines nano-antennes développent des réponses optiques dipolaires. Dans cette thèse nous démontrons comment l'utilisation d'une nano-ouverture papillon (nano-antenne dipolaire), à l'extrémité d'une pointe SNOM, permet de détecter et collecter uniquement une seule composante du champ proche électrique. Ce résultat est démontré d'un point de vue théorique par l'utilisation de simulation FDTD (Finite Difference Time Domain) et d'un point de vue expérimental par la caractérisation, par cette pointe innovante, d'échantillons diélectriques (réseaux, cristaux photoniques) et métalliques (milieux désordonnés plasmoniques).

Dans une deuxième partie, nous démontrons comment la sonde développée dans la première partie, peut être utilisée comme détecteur du signal émis par un nano-émetteurs (NE) unique. Il est étudié dans cette partie l'effet de couplage entre ces deux objets. Dans un premier temps, après la description complète des grandeurs caractéristiques d'un NE, nous démontrons théoriquement l'effet de la pointe sur la réduction du temps de vie de l'état excité et l'augmentation de la fluorescence d'un NE, en régime saturé et non saturé. Puis dans un deuxième temps nous démontrons expérimentalement comment cette sonde réduit le temps de vie de l'état excité de boîtes quantiques placées à son extrémité, en comparaison de pointes SNOM plus conventionnelles telle que la pointe diélectrique et la pointe à ouverture circulaire.

Mots clefs : Microscopie Champ proche optique, Nano-antennes optiques, Plasmonique, Nanopolariseur, Cristaux photoniques, Emetteurs uniques, Temps de vie, Fluorescence.

In the first part of this manuscript, we use in our advantage the concept of optical nano-antennas, to get new solutions on the interpretation problems of scanning near-field optical microscope (SNOM) images. Indeed, it is known that some of the developed nano-antennas can express dipolar behaviours. In this manuscript, we show how a bowtie nano-aperture (dipolar nano-antenna) embedded at the apex of a SNOM probe, can be used to detect and collect only one component of the electric near-field. This result is demonstrated as well theoretically, by the use of FDTD (Finite Difference Time Domain) codes, as experimentally, by the characterisation with this tip, of dielectric samples (diffraction grating and photonic crystals) and metallic ones (random plasmonic medium).

In a second part, we show how the tip previously described, can be used as a detector of the signal from single emitter (SE). We study in this part the coupling and interactions between those two objects. After a full description of a two level system characteristics, we show theoretically the effect of our probe on the reduction of the excited state life time and the enhancement of the fluorescence of the SE, in both regime, saturated and non-saturated. Then we describe experimentally how our special tip reduces the excited state life time of quantum dots placed at the apex of it, respect to more conventional SNOM probes as the dielectric and the circular aperture ones.

Key words: Scanning Near-Field Optical Microscopy, Optical Nano-antennas, Plasmonics, Nanopolarizer, Photonic Crystals, Single Emitters, Life Time, and Fluorescence.